

THESE

PRESENTEE A

L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Alain LOPEZ

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE ETUDE DES SOURCES ET DE L'EVOLUTION DES NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHERE



Soutenue le 4 Juin 1974 devant la Commission d'Examen

MM. D. BLANC

J. BRICARD

C.N. DAVIES

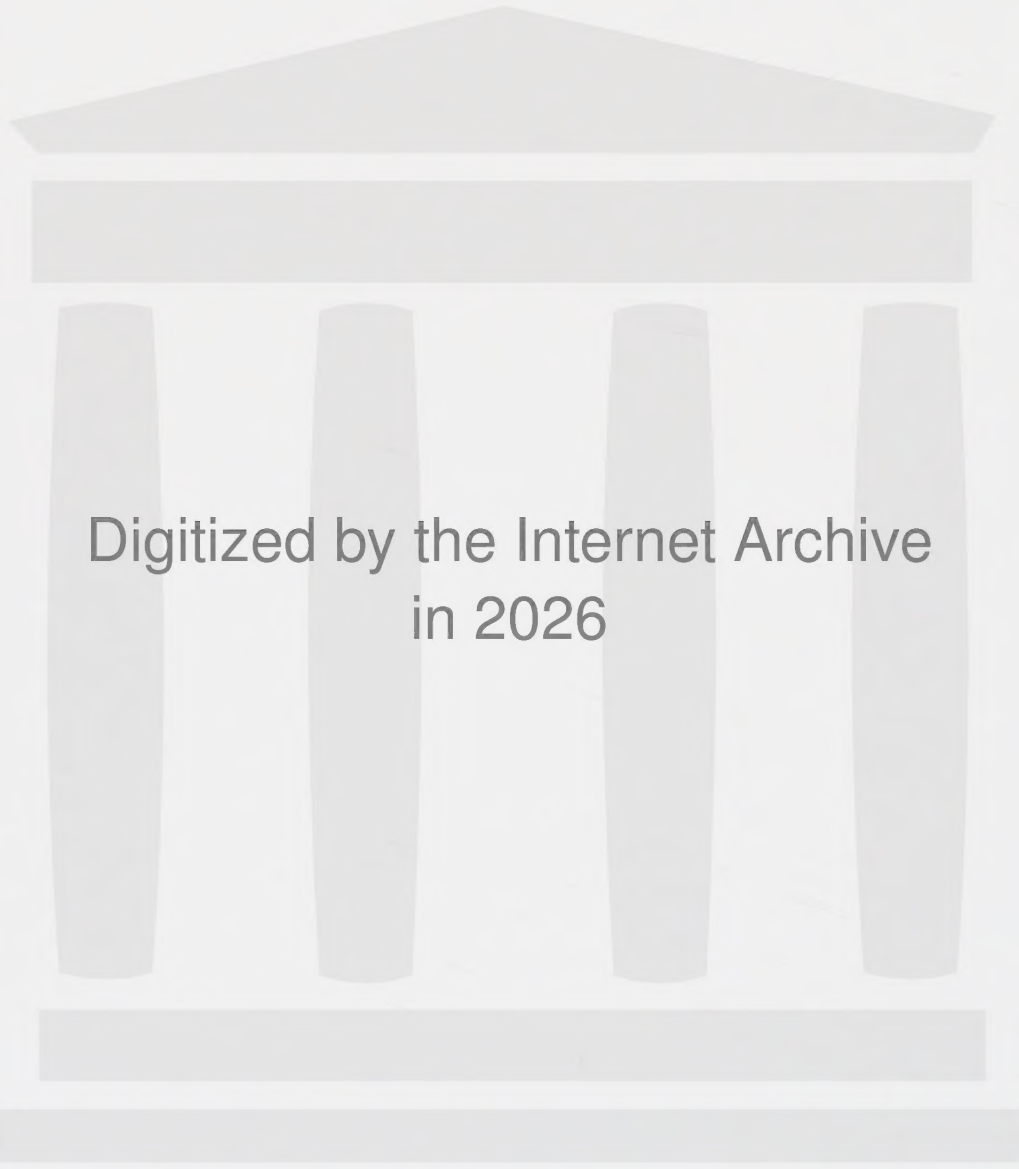
A. DEGEILH

J. FONTAN

J. PRADEL

Président

}
Examineurs



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546616_0043

THESE

PRESENTEE A

L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Alain LOPEZ

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE ETUDE DES SOURCES ET DE L'EVOLUTION DES NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHERE



Soutenue le 4 Juin 1974 devant la Commission d'Examen

MM. D. BLANC

J. BRICARD

C.N. DAVIES

A. DEGEILH

J. FONTAN

J. PRADEL

Président

Examineurs



UNIVERSITE PAUL SABATIER

TABLEAU DU PERSONNEL SCIENCES

DIRECTION DE L'UNIVERSITE

M. LARENG Président
M. MATHIS 1er Vice-Président
M. MARTIN 2ème Vice-Président

U.E.R. SCIENTIFIQUES

HONORARIAT

M. BEDOS Professeur honoraire
M. BLAIZOT Doyen honoraire
M. CAPDECOMME Doyen honoraire, Recteur honoraire correspondant de l'Institut
M. DIEHL Professeur honoraire
M. DUPOUY Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur Général honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire
M. DURAND Emile Doyen honoraire
M. ESCANDE Professeur honoraire, Membre de l'Institut
M. GAUSSEN Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. JACQUES Professeur honoraire
M. MASDUPUY Professeur honoraire
M. MATHIS Doyen honoraire
M. MIGNONAC Professeur honoraire
M. MORQUER Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. SECONDAT Professeur honoraire
M. TEISSIE-SOLIER Professeur honoraire
M. VANDEL Professeur honoraire, Membre de l'Institut

PROFESSEURS

M. CASTERAS Géologie, Correspondant de l'Institut
M. CAPDECOMME Minéralogie, Correspondant de l'Institut
M. NOUVEL Biologie générale
M. GALLAIS Chimie, Membre de l'Institut
M. DURAND Emile Physique
M. FERT Physique
M. LESBRE Chimie organique
M. HURON Mathématiques appliquées
M. MARGULIS Pédologie
M. TRICHE Chimie Analytique et Spectrographie
M. LEDOUX Zoologie appliquée
M. RIVALS Agriculture
M. PERRIER Physique
M. MATHIS Chimie
M. ORLIAC Géochimie et Minéralogie
M. LAFOURCADE Physique
M. ANGELIER Ecologie
Mlle DE FERRE Botanique
M. FARRAN Minéralogie et Géotechnique
M. LAUDET Physique Théorique et Calcul Numérique
M. SERFATY Biologie Animale
M. LAGASSE Electrotechnique
M. BLANC Physique Nucléaire
M. LEREDDE Botanique
M. LELUBRE Géologie
M. TROCHAIN Botanique
M. LALAGUE Mathématiques générales
M. BOUIGUE Astronomie
M. COUCHET Physique
M. ASSELINEAU Chimie Biologique
M. MAURET Chimie systématique
M. AGID Physiologie
M. MONTANT Cryptogamie
M. GAUTIER Physique
M. CRUVEYROLLE Mathématiques
M. GOUVINARD Géologie
M. PULOU Minéralogie
M. CAMBOU Physique spatiale
M. MIQUEL Chimie
M. LACOSTE Electrotechnique
M. THIBAUT Mécanique Rationnelle et Appliquée
M. MASCART Mathématiques
M. MEDIONI Psychophysique

M. RAYNAUD Pierre Physiologie animale
M. ZALTA Chimie Biologique
M. SEVELY Electrotechnique
M. POMMIEZ Mathématiques
M. REY Paul Biologie végétale
M. COULOMB Physique
M. TRINQUIER Physique
M. MARONI Chimie
M. BEETSCHEN Biologie générale
M. DERACHE Physiologie animale
M. SATGE Chimie organique
M. LATTES Chimie
M. VEDRENNE Géophysique
M. DURAND-DELGA Géologie
M. CARRARA Physique
M. JEANNIN Chimie Minérale
M. MAHENC Chimie
M. MIROUZE Géologie
M. BITSCH Zoologie
M. DEGEILH Physique
M. MARTIN J.C. Génie Electrique
M. REY Gérard Electronique, Electrotechnique, Automatique

PROFESSEURS ASSOCIES

M. ANDERSON Physique Spatiale

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. PICCA Physique
M. MERIC Mathématiques appliquées
Mme LECAL Zoologie
M. PILOD Physique
M. LARROQUE Physique
M. BARRANS Chimie
Mlle LAPEYRE Mathématiques - Informatique
M. BERTRAND Chimie
M. DESQ Mathématiques
M. ROCARD Electronique
M. POILBLANC Chimie
M. TOUZE Physiologie végétale
M. FRASNAY Mathématiques
M. CASSAGNAU Zoologie
M. GUERIN Mathématiques
M. PESCIA Physique
M. SOUQUET Géologie
M. SCHNEIDER Biologie cellulaire
M. SICARD Biologie génétique
M. de LOTH Chimie physique
M. SAPORTE Physique
M. PERENNOU Informatique
M. THENOZ Génie civil
M. CAUSSINUS Mathématiques Appliquées
M. DURAND Ph. Physique
M. CASTAN Informatique
M. REME Mesures Physiques
M. FONTAN Physique Nucléaire
M. BAUDRAS Chimie Biologique
M. CALVET Mécanique des Fluides
M. PAGANI Physique
M. BEAUFILS Informatique
M. BERTHELEMY Zoologie
M. TERJANIAN Mathématiques

MAITRES DE CONFERENCES

M. ATTEIA Mathématiques
M. CUPPENS Mathématiques
Mlle BARBANCE Mathématiques

M. VERDIER	Physique
M. GILLY	Génie mécanique
M. COTTU	Génie Mécanique
M. ROUTIE	Génie chimique
M. MARAL	Physique
M. HURAUX	Physique
M. LEGRAND	Génie civil
M. ABATUT	Electronique, Electrotechnique, automatique
M. SOTIROPOULOS	Chimie organique
Mme GERVAIS	Chimie inorganique
M. BONEL	Chimie
M. MAUSS	Mécanique
M. BANCE L	Mathématiques
M. JOSSERAND	Mesures Physiques
M. BETOURNE	Informatique
M. CAMPAN	Psychophysiologie
M. CLERC	Mécanique
M. GRIFONE	Mathématiques
M. ETTINGER	Mathématiques
M. LETAC	Mathématiques
M. BONNET Louis	Biologie
M. LOUARN	Génétique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

M. BACCAR	Chimie Organique
-----------	------------------

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. PRADINES	Mathématiques
M. NGUYEN THANH VAN	Mathématiques
M. GALINIER Michel	Informatique

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. NOUGARO	Hydraulique Générale et appliquée
M. GARDY	Génie chimique
M. BIREBENT	Electronique appliquée
M. VOIGT	Chimie minérale
M. MONTEL	Chimie physique et electrochimie
M. THIRRIOT	Hydrodynamique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. GRUAT	Mécanique des fluides (hydraulique)
M. BUGAREL	Génie chimique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. HAMANT	Botanique
Melle BERDUCOU	Physiologie végétale
M. DAT	Mécanique des fluides
M. FALLOT	Biologie végétale (Viticulture et arboriculture)
M. TRUCHASSON	Mécanique
M. HOFFMANN	Electronique
M. ENJALBERT	Chimie

M. MARTY	Physique industrielle
M. LEFEUVRE	Electronique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. ANGELINO	Génie chimique
M. DABOSI	E.N.S.C.T.

MAITRES DE CONFERENCES

M. MATHIEU	Chimie analytique
M. TRANNOY	Physique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. CASTAGNETTO	Mathématiques (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. GILOT	Génie chimique (Institut du Génie chimique)
M. CALMON	Techniques agricoles
M. MATHEAU	Electronique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. NOAILLES	Informatique
-------------	--------------

INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. ROQUES	Chimie industrielle
M. GRATELOUP	Génie électrique
M. MASO	Génie civil
M. MIRA	Génie électrique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. COLLETTE	Physique
M. FAGET	Physique
M. DURAND Gilbert	Chimie
M. SCHUTTLER	Physique

MAITRES DE CONFERENCES

M. LETURCO	Génie électrique
M. SIRIEYS	Génie Civil
M. BROUSSEAU	Physique
M. BESOMBES-VAILHE	Chimie
M. VERDIER Alain	Chimie

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. LACAZE	Mathématiques
-----------	---------------

ADMINISTRATION

M. PRINEAU	Secrétaire Général de l'Université Paul Sabatier
------------	--

A mes parents

A ma femme

A mes enfants

avec toute mon affection.

Ce travail a été effectué au Centre de Physique Atomique de l'Université Paul Sabatier de Toulouse, que dirige Monsieur le Professeur D. BLANC. Il m'a accueilli dans son laboratoire et c'est avec bienveillance qu'il m'a conseillé et encouragé tout au long de mes recherches. Il me fait à présent l'honneur de présider le jury de ma thèse. Je le prie de bien vouloir trouver ici l'expression de ma plus profonde gratitude.

-- --
--

Monsieur le Professeur J. FONTAN anime le Groupe de Physique des Aérosols et Échanges Atmosphériques dans lequel je travaille. Il a constamment suivi et dirigé cette étude qu'il m'a permis de mener à bien. Je tiens à l'assurer de ma plus sincère reconnaissance.

Monsieur le Professeur J. BRICARD, Directeur du Laboratoire de Physique des Aérosols de l'Université de Paris VI, a bien voulu accepter de juger mon travail. Je suis très sensible à l'honneur qu'il me fait en siégeant à mon jury.

Monsieur le Professeur C.N. DAVIES du Département de Chimie de l'Université d'Essex a accepté de participer au jury de ma thèse. Je lui en suis particulièrement reconnaissant. Qu'il sache aussi combien je suis sensible à l'honneur qu'il me fait de venir à Toulouse, malgré ses multiples occupations pour juger de la qualité scientifique de mon travail.

Monsieur le Professeur A. DEGEILH, Directeur du Laboratoire de Physique Electronique et Ionique, Directeur de l'U.E.R. Sciences Exactes et Expérimentales a bien voulu accepter de juger mon travail. Qu'il me soit permis de lui exprimer ici mes remerciements les plus respectueux.

Je suis très sensible à l'honneur que me fait Monsieur J. PRADEL, Chef du Service Technique d'Etude de Protection et de Pollution Atmosphérique au Commissariat à l'Energie Atomique, en participant à ce jury malgré les lourdes obligations qu'il assume.

Je tiens à exprimer ma plus sincère reconnaissance à Monsieur A. GAUVENET, Directeur du Cabinet de Monsieur le Haut Commissaire à l'Energie Atomique et à réitérer mes remerciements à Monsieur J. PRADEL qui m'ont accepté durant cinq ans comme boursier au Commissariat à l'Energie Atomique.

C'est pour moi un agréable devoir de remercier Messieurs P. ZETWOOG et G. MADELAINE, Ingénieurs au Commissariat à l'Energie Atomique, pour les nombreuses et fructueuses discussions qu'ils ont bien voulu m'accorder.

Ce travail est le fruit d'une collaboration entre les différents chercheurs d'une équipe animée par Monsieur le Professeur J. FONTAN. J'exprime à tous mes camarades mes plus sincères remerciements, et en particulier à :

- Monsieur A. CHAPUIS, pour l'aide amicale et efficace qu'il m'a apporté tout au long de son séjour au laboratoire ;

- Monsieur C. CABROL, pour la compétence scientifique et technique qu'il avait su déployer et qui me fut très utile. Que sa famille trouve ici le témoignage de ma plus profonde gratitude ;

- Monsieur J. SERVANT, qui anime dans le groupe les études de physico-chimie des aérosols, pour l'aide efficace qu'il a su m'apporter dans l'interprétation des résultats.

- Messieurs D. GUEDALIA et C. ALLET, pour m'avoir facilité le travail en assurant les mesures aériennes de radioactivité naturelle.

Le personnel du Centre Aérien d'Etudes Météorologiques de Brétigny a assuré les missions et la maintenance des mesures aériennes. Je tiens à exprimer mes plus sincères remerciements à Monsieur L'Ingénieur en Chef EVRAUD, à Messieurs VEBER, FICHOT et ROMIGUIERE pour leur aide et leur compréhension.

Je remercie enfin tous les techniciens du laboratoire, plus spécialement Monsieur L. LANEGRASSE, pour son appui dans les réalisations expérimentales, Mademoiselle G. GUILLE et Monsieur M. BELINGUIER qui se sont chargés de la présentation matérielle de ce mémoire.

: - : -
:

RESUME

Le but de ce travail a été de caractériser l'intensité des sources de noyaux d'Aitken à l'échelle mésométéorologique et leur évolution dans la basse troposphère.

Des méthodes d'études "in situ" originales sont développées et appliquées aux principales sources du Sud-Ouest de la France. On montre l'intérêt d'utiliser des traceurs radioactifs naturels Radon et ^{212}Pb pour l'étude des constituants mineurs de la basse atmosphère et en particulier des noyaux d'Aitken.

Les résultats expérimentaux obtenus dans le Sud-Ouest de la France permettent d'expliquer les variations de teneurs en particules, observées au niveau du sol, qui sont liées à l'intensité des échanges verticaux de matière et à l'augmentation diurne de l'intensité de la source avec l'ensoleillement.

Les mesures effectuées en des sites convenablement choisis (agglomérations, complexes industriels, zone rurale, zone forestière de résineux) permettent de caractériser la composante artificielle et naturelle de ces particules à l'échelle de la région. Un premier bilan montre que 25 % des noyaux sont d'origine artificielle, 75 % d'origine naturelle.

-:-

-:- -:-

ABSTRACT

The purpose of this study has been to measure the intensities of Aitken nuclei source on a mesometeorological scale, as well as their evolution in the low troposphere.

Original "in situ" methods of study are developed and applied to the main sources of South-Western France. The advantages of using radioactive tracers (radon and ^{212}Pb) to study the evolution of the trace constituents -and more specifically Aitken nuclei- in lower atmosphere has been pointed out.

The experimental results we got in South-West France allow to explain the variations of the particle contents observed at ground level. These variations depend on the intensity of vertical exchanges of matter and on the diurnal increase of the source intensity with insolation.

The measurements, carried out in suitably chosen places (urban centers, industrial areas, rural area, coniferous forest belt) allow to characterize the artificial and natural components of these particles, on the district scale.

A first budget of Aitken nuclei shows that 25 % of them revealed an artificial origin while the remaining 75 % revealed a natural one.

TABLE DES MATIERES

AVANT PROPOS.....	PAGE 1
INTRODUCTION.....	3
CHAPITRE I : <u>METHODES ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX POUR LA MESURE DES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES DES NOYAUX D'AITKEN.....</u>	
I. MESURE DE LA CONCENTRATION EN NOYAUX D'AITKEN.....	5
I.1 Rappel de la théorie de la condensation.....	6
I.2 Principe de l'appareil.....	6
I.3 Description du compteur.....	7
I.4 Etalonnage.....	8
I.5 Effet de la température et de la pression sur le comptage des noyaux à l'aide de compteurs photoélectriques Influence sur les mesures expérimentales effectuées en altitude.....	9
I.6 Conclusion.....	11
II. DETERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES. MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION MOYEN.....	12
II.1 Relations entre le coefficient de diffusion et la dimension des particules.....	12
II.2 Mesure du coefficient de diffusion : batterie de diffusion.....	14
II.3 Limite de la méthode.....	16
III. MESURE DES PARAMETRES ELECTRIQUES : CONCENTRATION EN PETITS IONS ET GROS IONS.....	16
III.1 Ions atmosphériques.....	17
III.2 Généralités sur la précipitation électrostatique....	17
III.3 Réalisation des précipitateurs électrostatiques.....	18
CHAPITRE II : <u>METHODES DE MESURE DE L'INTENSITE DES SOURCES DE NOYAUX D'AITKEN. APPLICATION A QUELQUES UNES DES PRINCIPALES SOURCES NATURELLES ET ARTIFICIELLES DU SUD-OUEST DE LA FRANCE.....</u>	
I. SOURCE DE NOYAUX QUASI PONCTUELLE CONTRIBUANT A L'ETABLISSEMENT D'UN PANACHE. CAS DES AGGLOMERATIONS ET COMPLEXES INDUSTRIELS.....	24
I.1 Principe de la méthode.....	24
I.2 Flux de particules issues de l'agglomération de Toulouse.....	26
I.3 Flux de particules issues du complexe industriel de Lacq.....	28
I.4 Détermination du taux de formation de noyaux dans le panache d'une source.....	31
A. EVALUATION DES PERTES.....	32
B. ESTIMATION DU TAUX DE FORMATION DANS LE PANACHE.	33
C. RESULTATS EXPERIMENTAUX DANS LE CAS DE L'AGGLOMERATION DE TOULOUSE ET DU COMPLEXE DE LACQ.....	34

II. DETERMINATION DU TAUX DE FORMATION DANS LE CAS D'UNE SOURCE PRESENTANT UNE GRANDE SUPERFICIE. APPLICATION A UNE SOURCE NATURELLE : LA FORET DES LANDES.....	34
II.1 - Principe de la methode.....	34
II.2 - Application à la forêt des Landes.....	35
III. METHODE DE DETERMINATION DU TAUX DE FORMATION DE NOYAUX DANS LE CAS D'UNE SOURCE UNIFORMEMENT REPARTIE SUR LE TRAJET D'UNE MASSE D'AIR	36
III.1 Principe de la méthode.....	36
III.2 Application à la détermination du taux de formation moyen de noyaux dans la couche de mélange en zone non polluée	37
A. EVALUATION DU TAUX DE FORMATION MOYEN AU COURS DE L'EXPERIMENTATION	38
B. INTERPRETATION DES PROFILS VERTICAUX OBTENUS A L'ISSUE DE L'EXPERIMENTATION	39
IV. CONCLUSION.....	40

CHAPITRE III : COMPARAISON DES REPARTITIONS VERTICALES DE NOYAUX D'AITKEN, RADON ET ^{212}Pb . APPLICATION A L'ETUDE DE L'EVOLUTION ET DES SOURCES DE NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHERE.....	43
I. Généralités sur le radon et le ^{212}Pb	43
II. Dispositif expérimental.....	45
III. Comparaison entre les profils de répartition verticale de no- yaux d'Aitken, ^{212}Pb et radon.....	46
IV. Evolution comparée des profils de répartition des noyaux d'Ait- ken, radon et ^{212}Pb	47
IV.1 en fonction du temps.....	47
IV.2 dans une masse d'air.....	48
IV.3 capture par les nuages.....	49
V. COMPARAISON ENTRE LES QUANTITES TOTALES DE NOYAUX D'AITKEN, RADON ET ^{212}Pb CONTENUES DANS L'ATMOSPHERE.....	50
VI. CONCLUSION.....	51

CHAPITRE IV : CARACTERISATION DE LA SOURCE DE NOYAUX D'AITKEN EN ZONE RURA- LE PEU POLLUEE.....	52
I. MOYENS EXPERIMENTAUX.....	52
II. CARACTERISTIQUES DU SITE EXPERIMENTAL.....	53
III. RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	54
III.1 Variation des concentrations en noyaux d'Aitken avec la direction du vent.....	54
III.2 Variation des concentrations en noyaux observées au niveau du sol, en fonction de l'intensité des échan- ges verticaux de matière dans l'atmosphère.....	55
A. LES ECHANGES VERTICAUX.....	55
B. LES CONCENTRATIONS DE NOYAUX.....	56
C. LES CARACTERISTIQUES DE LA SOURCE.....	57

III.3 Analyse statistique des résultats.....	62
A. VARIATIONS JOURNALIERES MOYENNES.....	63
B. CORRELATION ENTRE LE RAPPORT RADON/NOYAUX ET L'EN-	
SOLEILLEMENT.....	64
IV. EVALUATION DU Taux DE FORMATION DES NOYAUX D'AITKEN.....	64
V. CARACTERISATION PHYSIQUE DES NOYAUX : DIMENSION MOYENNE, FRACTION	
DES PARTICULES ELECTRIQUEMENT CHARGEES.....	72
V.1 Etude de la dimension moyenne des noyaux d'Aitken	72
V.2 Etude de la fraction de particules chargées.....	74
VI. CONCLUSION.....	74
CHAPITRE V : <u>INFLUENCE DE LA CONCENTRATION EN NOYAUX D'AITKEN SUR CELLE DES</u>	
<u>PETITS IONS. APPLICATION A LA MESURE DE LA GRANULOMETRIE MOYENNE DES</u>	
<u>NOYAUX</u>	75
I. GENERALITES SUR LES PETITS IONS.....	75
II. RELATIONS THEORIQUES ENTRE LE NOMBRE DE PETITS IONS, L'INTENSITE	
D'IONISATION ET LE NOMBRE DE NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHE-	
RE.....	76
II.1 Equations d'évolution des petits ions.....	76
II.2 Variation du rapport n^+/n^-	77
II.3 Variation de la concentration en petits ions en fonction	
du nombre de noyaux et de l'intensité d'ionisation.....	77
A. DANS LES BASSES COUCHES.....	77
B. EN ALTITUDE.....	79
III. RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	79
IV. CONCLUSION.....	82
CONCLUSION.....	85
ANNEXE 1.....	89
ANNEXE II.....	93
BIBLIOGRAPHIE.....	99

A V A N T - P R O P O S

Ce travail présente une étude "in situ" des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère avec pour objectifs :

- faire la part des aérosols naturels et artificiels à l'échelle mésométéorologique (à titre d'exemple celle du Sud Ouest de la France) afin de déterminer l'augmentation du niveau moyen de la pollution atmosphérique particulaire) ;
- connaître les caractéristiques d'évolution, de transport vertical et horizontal de cette pollution à l'échelle de quelques centaines de kilomètres.

Les noyaux d'Aitken sont des particules de dimension comprise entre quelques 10^{-8} cm et 10^{-5} cm ; ils sont considérés comme un indice de pollution et représentent en nombre la majorité des aérosols.

Ces particules ont une origine essentiellement continentale (LANDSBERG, 1938 ; BLANCHARD, 1963 ; ROLL, 1965) ; elles sont produites d'une part dans les zones polluées, d'autre part dans les zones non polluées vraisemblablement à partir de réaction de transformation sur des constituants gazeux provenant du sol ou de la végétation. Cette production naturelle et artificielle est confirmée par les valeurs des concentrations mesurées au niveau du sol en différents sites (tableau 1).

Situations des mesures	Nombre d'observation	Noyaux / cm ³		
		Moyenne	Moyenne	
			Max.	Min.
-Grande ville	2 500	147 000	379 000	49 100
-Ville moyenne	4 700	34 300	114 000	5 900
Zone rurale (à l'intérieur des terres)	3 500	9 500	66 500	1 050
Zone rurale(près de la mer)	7 700	9 500	33 400	1 550
-Montagne				
(500-1000 m)	870	6 000	36 000	1 390
(1000-2000 m)	1 000	2 130	9 830	450
(2000 m)	190	950	5 300	160
-Océan	600	940	4 680	840

TABLEAU 1 : Concentrations en noyaux d'Aitken mesurées au niveau du sol en différents sites (STERN, 1968).

Les sources artificielles sont nombreuses. On cite en général parmi les plus importantes les processus de combustion et la photo-oxydation de polluants gazeux (SO_2 , oxyde d'azote, hydrocarbures...). Les études de MEGAW et WIFFEN (1961) faites à Harwell, suggèrent la présence dans l'atmosphère d'une grande majorité de noyaux d'origine organique.

Parmi les sources naturelles, en plus des réactions précédemment citées, pouvant se produire sur certaines émanations gazeuses du sol ou composés résultant de leur transformation dans l'atmosphère ($\text{H}_2\text{S} \rightarrow \text{SO}_2$ par exemple) WENT (1966) a montré

que certaines essences végétales pouvaient participer à la formation de noyaux. D'après RASMUSSEN (1965, 1972) certaines de ces substances : α , β pinène, myrcène, isoprène, carotène, seraient en quantité suffisante dans l'atmosphère pour rendre compte de la formation d'un nombre important de noyaux. Les réactions de transformation gaz-solide dans le cas des essences végétales se feraient en deux temps (WENT, 1960)

- oxydation des essences avec formation de peroxydes et d'ozonides ;
- transformation photolytique de ces composés sous l'action du rayonnement solaire.

Cependant, SCHAEFER (1970) a signalé que le mélange de vapeurs de terpène et d'iode dans de l'air provenant d'un site rural pouvait donner naissance à des noyaux en l'absence de lumière.

L'étude de ces différents mécanismes de formation constitue le pôle d'attraction de nombreuses équipes de recherche traitant des problèmes de chimie atmosphérique et de pollution de l'air. De nombreux travaux sont entrepris en milieu contrôlé pour essayer de comprendre les mécanismes de transformation photolytique des polluants gazeux de l'atmosphère : RENZETTI (1960), ENDOW (1963), STEVENSON (1965), MADELAINE (1968), VOHRA (1970), COX (1970), TWOMEY (1971), BRICARD (1971).

Ces différentes études, centrées principalement sur la transformation photolytique du SO_2 par les U.V. du soleil font apparaître que ces réactions sont étroitement liées à la présence de certains constituants gazeux ou solides jouant le rôle de catalyseur (ammoniac, oxydes d'azote, aérosols...). Ces réactions à 3 corps sont d'une très grande complexité, complexité accrue par le fait que les mesures effectuées en milieu contrôlé pourraient être soumises à un effet de paroi, Twomey (1971, 1973).

Ces études de laboratoire présentent l'avantage de repertorier les réactions les plus probables et de préciser dans certaines conditions la cinétique de ces transformations. En ce qui concerne leur extrapolation à l'atmosphère libre, nous pensons qu'il est nécessaire de développer parallèlement des études in situ des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère. Elles devraient permettre de préciser, pour les différentes sources, l'influence des paramètres naturels sur la formation des noyaux et par conséquent de mieux orienter les mesures effectuées en milieu contrôlé.

Pour ces raisons, j'ai développé des méthodes d'études in situ des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère avec pour objectifs faisant l'objet de ce travail

- la caractérisation physique des sources (intensité, homogénéité, localisation spatiale) ;
- le devenir des aérosols dans l'atmosphère qui est lié à la source, à l'intensité des échanges verticaux de matière et aux phénomènes de disparition, coagulation et lessivage par les nuages et précipitations.

INTRODUCTION

L'étude des noyaux d'Aitken atmosphériques a fait l'objet de nombreuses mesures expérimentales. Ces dernières, ne présentent en général qu'un aspect purement descriptif, ne faisant que confirmer l'origine continentale et les caractéristiques d'indice de pollution de ces particules. Des mesures in situ, effectuées en des sites convenablement choisis devraient permettre d'obtenir des informations intéressantes sur les sources et l'évolution de ces noyaux dans l'atmosphère. Pour ces raisons j'ai développé mes recherches dans ce domaine en limitant mes études à l'échelle du Sud-Ouest de la France, région à prédominance rurale qui présente des sources de noyaux diverses et certaines bien localisées (zone urbaine, industrielle, forestière, de campagne).

Les concentrations en noyaux d'Aitken, mesurées en altitude ou au niveau du sol sont soumises à deux facteurs : le premier est strictement lié aux noyaux c'est-à-dire aux caractéristiques des sources et à l'évolution de ces particules, le second à l'intensité des échanges verticaux de matière qui dépend des caractéristiques thermodynamiques de l'atmosphère. Il est donc nécessaire pour une caractérisation des sources de faire la part de ces deux facteurs sur les variations de concentrations mesurées.

J'ai été amené, pour cela, à développer des méthodes d'études qui outre les applications que j'en donne pour les noyaux d'Aitken, peuvent être généralisées, nous pensons, pour l'étude des constituants mineurs de l'air.

J'ai bénéficié de l'expérience acquise au laboratoire sur la mesure des échanges verticaux de matière dans les basses couches de l'atmosphère (0-2000m) à partir des traceurs radioactifs naturels radon et ^{212}Pb (DRUILHET, 1973 ; GUEDALIA, 1973, 1974 ; SERVANT, 1964).

J'ai utilisé cette méthode des traceurs radioactifs pour l'étude des noyaux d'Aitken ; les premiers résultats auxquels je parviens en montre l'intérêt.

Je présente dans un premier chapitre, les dispositifs expérimentaux destinés à la mesure des caractéristiques physiques des particules (concentration, granulométrie, état de charge) que nous avons été amenés à réaliser.

Dans l'étude "in situ", entreprise à l'échelle du Sud-Ouest de la France, un des premiers objectifs a été de déterminer les sources de noyaux et leur intensité. Je présente dans un deuxième chapitre différentes méthodes qui font appel à des mesures aériennes et qui sont utilisées dans le cas de quelques-unes des principales sources naturelles et artificielles de la région considérée.

Les particules ainsi générées évoluent dans l'atmosphère : leur évolution est étudiée dans un troisième chapitre à partir des mesures simultanées de répartitions verticales des noyaux d'Aitken, radon et ^{212}Pb . Leur comparaison permet de préciser dans certaines conditions la répartition des sources à l'échelle de la région, leur localisation en fonction de l'altitude et le temps de vie apparent de ces particules dans l'atmosphère.

Une étude détaillée des différentes sources mises en évidence est nécessaire, pour déterminer dans chacun des cas l'influence des réactions photolytiques sur le taux de formation des noyaux et les caractéristiques physiques des particules ainsi émises.

J'ai entrepris cette étude dans une quatrième partie en me plaçant dans le cas le plus simple, celui d'une zone rurale peu polluée, et en mesurant au niveau du sol les variations de concentrations en noyaux et en radon. Le radon est utilisé comme indicateur de stabilité des basses couches de l'atmosphère.

Je montre dans un cinquième chapitre l'influence des noyaux d'Aitken sur la concentration en petits ions. Les mesures simultanées des répartitions verticales de ces éléments avec celle du radon agent ionisant important des basses couches de l'atmosphère permettent de déterminer la granulométrie moyenne des noyaux en fonction de l'altitude.

Je dresse enfin en conclusion, à partir des résultats obtenus dans les différents chapitres, un premier bilan situant l'importance des sources artificielles sur les teneurs en noyaux observées dans la région étudiée.

CHAPITRE I

MÉTHODES ET DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX POUR LA MESURE DES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES DES NOYAUX D'AITKEN

Je présente dans ce chapitre le principe et la réalisation des différents appareils qui ont été réalisés, pour la mesure in situ des caractéristiques physiques des particules (concentration, dimension moyenne, état électrique). Cette partie technique a été conditionnée par la mise au point d'un appareillage embarcable à bord d'avion, autonome, automatique, portable, d'encombrement réduit et fiable en fonction des différentes conditions expérimentales. Elle a été développée, dans un premier temps, grâce à une collaboration avec le Commissariat à l'Energie Atomique pour la mesure des caractéristiques physiques des aérosols dans les mines d'uranium où les problèmes expérimentaux que nous avons à résoudre étaient similaires à ceux rencontrés dans l'atmosphère. Je ne traite pas dans mon mémoire de thèse cette étude qui a été effectuée dans les mines d'uranium. Elle a fait l'objet de différentes publications que je donne en référence (LOPEZ, 1969 ; CHAPUIS, 1970, 1971, 1973).

I. MESURE DE LA CONCENTRATION EN NOYAUX D'AITKEN (1)

Noyaux d'Aitken et noyaux de condensation agissent comme embryons dans les processus de condensation qui ont lieu lors de la formation naturelle ou artificielle des nuages et des brouillards. Les noyaux de condensation sont dans une gamme de dimensions comprises entre 10^{-5} et 10^{-4} cm ; ils ont la propriété de condenser la vapeur d'eau pour des taux de sursaturation rencontrés dans l'atmosphère.

Les noyaux d'Aitken sont dans une gamme de dimensions comprises entre 10^{-7} et 10^{-5} cm ; ils condensent eux aussi la vapeur d'eau, mais pour des taux de sursaturation généralement plus élevés. Leur concentration est généralement plus grande que celle des noyaux de condensation.

Pour mesurer la concentration en particules plusieurs types d'appareils existent. Ils utilisent tous le même procédé ; il consiste à placer l'aérosol en milieu sursaturé afin qu'il y ait formation de gouttelettes autour des noyaux, lors d'une détente adiabatique, ce qui les rend facilement détectable.

Le premier appareil réalisé a été le compteur d'Aitken (1911) dans lequel le comptage était effectué visuellement ; il est peu commode et inutilisable pour des mesures continues. POLLAK (1952, 1963) réalisa un compteur dans lequel la concentration est déduite de la mesure de l'extinction d'un faisceau lumineux ; il est manuel, non autonome et encombrant. Le compteur de RICH (1955) identique à celui de POLLAK, mais pour lequel la détente se fait en deux temps permet en faisant certaines hypothèses d'obtenir la granulométrie des particules.

Basés sur les mêmes principes, de nombreux compteurs ont été réalisés ; nous

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue "Aerosol Science" (CAEROL C., LOPEZ A., CHAPUIS A., FONTAN J., 1972)

citerons ceux de VERZAR (1953), METNIEKS (1957), MURPHY (1958), HAYES et SCOTT (1969), KANTER (1969).

Si à notre connaissance, certains de ces compteurs ont été automatisés, aucun n'est autonome et portatif permettant de faire des mesures "in situ". Des compteurs de noyaux ont été réalisés industriellement aux USA. Lourds, encombrants et coûteux, ils ne sont utilisables qu'en laboratoire.

Nous avons été amenés, pour ces différentes raisons, à réaliser un appareillage adapté à nos mesures. Je présente dans ce paragraphe ses principales caractéristiques. On en trouvera une description plus détaillée dans la thèse de C. CABROL (1970).

I.1 - Rappel de la théorie de la condensation

Je rappelle brièvement dans ce paragraphe les lois classiques de la nucléation qui permettent de fixer les caractéristiques de fonctionnement du compteur. Pour qu'un noyau devienne gouttelette d'eau, il faut le placer dans un milieu où la sursaturation en vapeur d'eau (S) soit plus élevée que la sursaturation critique (S_{cr}) correspondant à son rayon. Cette sursaturation est obtenue dans le compteur par une détente instantanée, c'est-à-dire adiabatique.

Les lois classiques de la thermodynamique permettent de déterminer pour un mélange donné, le taux de sursaturation S .

$$P_1, T_1, P_2, T_2, b, \gamma$$

P : pression

T : température

b et γ : constantes caractéristiques du mélange (ici air-vapeur d'eau)

Les indices 1 et 2 se réfèrent au temps avant et après la détente.

La sursaturation ne dépend que du taux de détente (déterminé par le rapport P_2/P_1) et de la température initiale du système.

Le taux de sursaturation critique S_{cr} est déterminé en fonction du rayon de la particule par la relation de KELVIN.

$$S_{cr} = \frac{2\sigma}{rM}$$

σ : tension superficielle du liquide constituant la goutte

ρ : densité du liquide constituant la goutte.

M : masse molaire du liquide constituant la goutte.

r : rayon de la particule

En identifiant (1) et (2) et en faisant varier le taux de détente (P_2/P_1) et la température initiale du système, on obtient le rayon minimum des noyaux qui vont condenser pour différentes conditions. On note sur la figure 1, que ce rayon minimum est étroitement lié au taux de détente, il est peu influencé par contre par les variations de température.

I.2 - Principe de l'appareil

On crée, un milieu sursaturé en vapeur d'eau, afin qu'il y ait lors d'une

détente adiabatique, formation de gouttelettes autour des noyaux. La sursaturation est obtenue par une méthode de surpression, c'est-à-dire par compression isotherme du volume d'air à analyser. Le taux de détente est donné par un rapport de volume, il est ainsi constant quelle que soit la pression extérieure. Pour couvrir la gamme de dimension des noyaux d'Aitken, la valeur du taux de détente est fixée à 1,36, correspondant à un rayon minimum détectable de 7.10^{-8} cm.

La détection des gouttelettes est assurée à l'aide d'un système lampe-cellule photoélectrique mesurant le taux d'extinction lors de la détente adiabatique.

1.3 - Description du compteur

La figure 2 représente le compteur. L'air à analyser pénètre directement à l'aide d'une pompe à circulation (C) dans la chambre de mesure (A) de 210 cm^3 de volume utile pour 30 cm de longueur.

La position horizontale de la chambre permet de réduire le volume de l'appareil ; elle offre en outre l'avantage de pouvoir être utilisée dans la partie inférieure comme réservoir d'eau assurant une autonomie de 3 jours.

L'air admis dans la chambre est ensuite comprimé par un ensemble cylindre-piston (B). Le taux de compression est déterminé par la course du piston.

L'ouverture des vannes, provoque une détente adiabatique très rapide de l'ordre de 10^{-2} s.

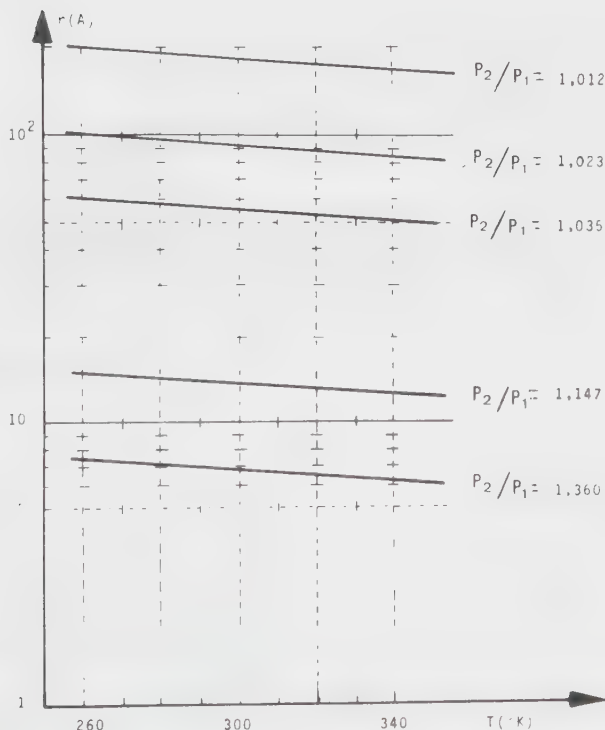


FIGURE 1 : Variation du rayon minimum des particules qui condensent la vapeur d'eau en fonction du taux de détente et de la température initiale.

L'automatisation est obtenue par un programmeur (G) entraîné par un moteur. Un jeu de minirupteurs solidaires de l'axe du piston permet d'obtenir un cycle reproductible. La périodicité des mesures est de une par minute. La chronologie des opérations est donnée sur le tableau 2.

Le système de détection est constitué :

- par un ensemble optique (E) donnant un faisceau de lumière blanche parallèle, situé à une extrémité de la chambre de mesure ;

- par une cellule photo résistante, à réponse linéaire située à l'autre extrémité de la chambre. Lors de la détente adiabatique les gouttelettes qui se sont formées autour des noyaux provoquent une atténuation du faisceau lumineux arrivant sur la cellule. Une diminution du signal délivré par cette dernière est alors enregistrée.

Le taux d'extinction s'écrit :

$$E(\%) = \frac{I_0 - I}{I_0}$$

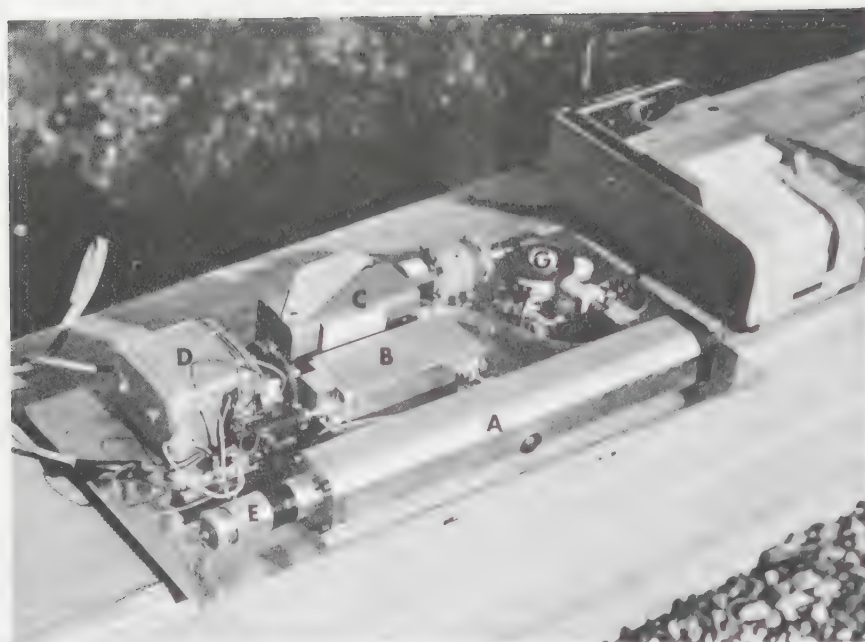


FIGURE 2 : Installation de mesure des noyaux d'Aitken.

- A : chambre de mesure
- B : chambre de compression
- C : pompe
- D : moteur
- E : système optique
- G : programmeur.

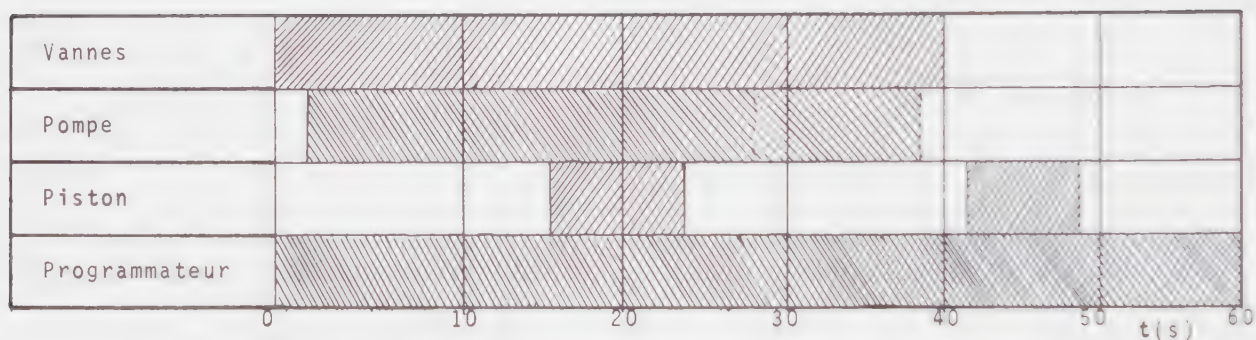


TABLEAU 2 : Cycle de fonctionnement du compteur de noyaux.

avec :

I_0 : signal base, délivré par la cellule avant l'extinction

I : signal délivré par la cellule à l'extinction.

Le signal base I_0 est soumis à des variations lentes en fonction du temps dues principalement au phénomène de condensation sur les lames de verre constituant les extrémités de la chambre ; ces variations ont pu être évitées, ce qui est souhaitable pour un dépouillement aisé lors de mesures continues, à l'aide d'une régulation électronique dont le détail a été présenté par CABROL (1972).

L'ensemble du compteur est autonome, il est alimenté par un accumulateur de 6 volts. Sa consommation est de 1,5 A.

I.4 - Etalonnage

Nous avons dans un premier temps, procédé à un étalonnage expérimental par comparaison au compteur de noyaux fabriqué par la "General Electric" (courbe 1, figure 3).

Dans un deuxième temps, nous avons procédé à un étalonnage théorique qui consiste à calculer la masse d'eau qui condense au cours de la détente et à appliquer aux gouttelettes ainsi formées, les théories de la diffusion de lumière.

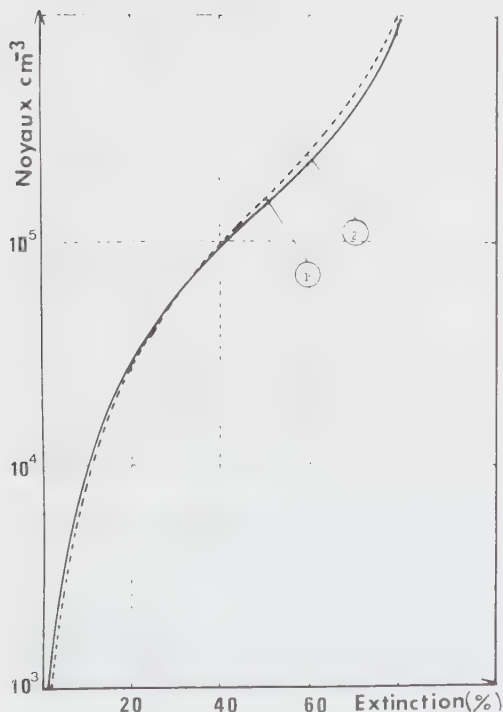
NOLAN et SCOTT (1964) ont effectués ce calcul, en supposant qu'il existe un équilibre thermique entre la goutte et le gaz qui l'entoure. Cette hypothèse conduit à des résultats satisfaisants pour des concentrations supérieures à 10^5 noyaux cm^{-3} .

Pour des teneurs plus faibles, nous avons repris ce calcul en tenant compte du déséquilibre thermique entre la goutte et le gaz qui l'entoure (ce déséquilibre est fonction du temps de formation des gouttelettes de l'ordre de 10^{-2} s). Les différentes étapes de ce calcul sont présentées dans la thèse de C. CABROL (1970). La courbe 2 de la figure 3 présente les résultats de cette étude. On constate une bonne concordance entre l'étalonnage théorique ainsi proposé et l'étalonnage expérimental réalisé.

La sensibilité de l'appareil est de l'ordre de 300 particules cm^{-3} . L'erreur absolue sur la détermination des concentrations qui est portée sur le tableau 3 est estimée en prenant une précision sur la mesure du taux d'extinction de 0,5 % ($E (\%) \pm 0,5 \%$).

Erreur absolue (particules cm^{-3})	Concentration mesurée (particules cm^{-3})
500	10^3
750	10^4
1000	$2 \cdot 10^4$
1250	$3 \cdot 10^4$
1700	$4 \cdot 10^4$
2000	$6 \cdot 10^4$

TABLEAU 3 : Erreur absolue sur la détermination des concentrations en noyaux.



1.5 - Effet de la température et de la pression sur le comptage des noyaux à l'aide de compteurs photoélectriques - Influence sur les mesures expérimentales effectuées en altitude

Les travaux de SCHLARB (1940), NOLAN et SCOTT (1964), POLLAK et METNIEKS (1960) mettent en évidence une influence de la température et de la pression sur la réponse des compteurs photoélectriques. J'examine dans ce paragraphe chacun de ces deux paramètres en précisant leur importance sur les mesures que j'ai effectuées en altitude.

A. INFLUENCE DE LA TEMPERATURE

Les auteurs précédemment cités ont montré

FIGURE 3 : Courbes d'étalonnage du compteur de noyaux d'Aitken établies à la température de 20°C et à la pression de 760 mm de Hg. (1) expérimental ; (2) théorique.

qu'une diminution de la température du compteur, par rapport à celle de l'étalonnage, entraînait une décroissance de l'extinction du faisceau lumineux lors de la détente qui serait :

- proportionnelle à l'écart de température ;
- d'autant plus faible que l'extinction est faible ;
- d'autant plus faible que la taille des particules est petite et que le système est monodispersé.

On ne trouve pas, par ailleurs, de différence sensible en faisant pénétrer de l'air chaud ou froid dans le compteur refroidi. Ceci semblerait montrer que c'est la température de ce dernier qui joue un rôle important, le gaz à analyser devant se mettre en équilibre thermique avec le compteur durant le cycle précédent la détente.

Des mesures ont été effectuées au laboratoire en maintenant le compteur à une température comprise entre 18 et 20°C et une température de l'air variant de +5°C à +40°C. Les résultats qui sont donnés sur la figure 4 ne mettent pas en évidence de différences sensibles dans les résultats.

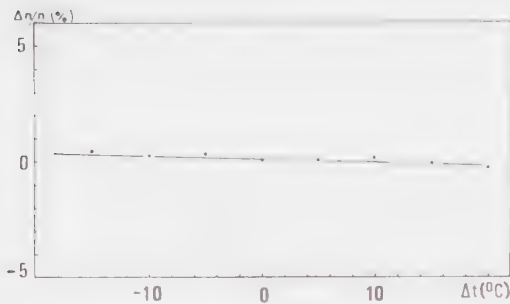


FIGURE 4 : Effet de la température de l'air analysé sur le comptage des noyaux. La température du compteur (t_0) est maintenue à 19°C. $n = n_{t_0} - n(t)$; $\Delta t = t - t_0$.

En ce qui concerne les mesures effectuées en altitude, il faut préciser que le compteur est situé dans la cabine de l'avion où la température est maintenue sensiblement constante autour de 20°C par le circuit climatisation. De plus, l'air qui pénètre dans le compteur parcourt dans la cabine une distance de 1 mètre dans un tuyau de cuivre, $\phi = 2$ cm.

Dans ces conditions, les mesures effectuées jusqu'au niveau 2500 m sont, en ce qui concerne l'influence de la température, similaires à celles qui ont été effectuées au laboratoire ; son effet peut par conséquent être négligé.

Pour les mesures effectuées au niveau 6000 mètres, (Figure 54 chapitre V), un chauffage préalable de l'air est effectué avant qu'il pénètre dans le compteur.

B. INFLUENCE DE LA PRESSION

Les auteurs précédemment cités ont mis en évidence, une diminution de l'extinction du faisceau lumineux, lors de la détente, avec les pressions décroissantes.

SCHLARB (1940) interprète ce phénomène en émettant l'hypothèse qu'aux pressions réduites, certains noyaux perdent leur propriété de condenser la vapeur d'eau. NOLAN et SCOTT (1964) pensent que la quantité d'eau qui condense est plus faible, ce qui entraîne une diminution de la taille des gouttelettes et donc une réponse moindre.

Les expériences de POLLAK et METNIEKS (1960) montrent que la diminution de concentration observée est :

- d'autant plus importante que la diminution de pression par rapport à la pression d'étalonnage est grande ;
- d'autant plus faible que la concentration est petite et que l'aérosol est monodispersé.

La diminution d'extinction ΔE est donnée sur la figure 5 en fonction de l'extinction (E) pour différents abaisséments de pression (par rapport à la pression de référence, 760 mm de Hg).

Sur les mesures réalisées en altitude, cela va se traduire par une sous-estimation des concentrations dont les valeurs sont portées sur le tableau 4.

Altitude (mètres)	Abaissement de pression par rapport à la pression d'étalonnage	Concentration en particules		Sous-estimation		
		E (%)	Z part. cm ³	ΔE (%)	ΔZ part. cm ⁻³	$\frac{\Delta Z}{Z}$ (%)
6000	54 %	2	1500	0,45	500	33
2500	22,5 %	2	1500	0,15	150	10
1000	9 %	10	10000	0,3	600	6
	9 %	20	28000	0,6	1400	5

TABLEAU 4 : Sous-estimation sur les concentrations en noyaux calculée en fonction de l'altitude du prélèvement pour les teneurs observées dans les mesures expérimentales.

En ce qui concerne les mesures effectuées au niveau 6000 mètres (figure 54, chapitre V), la sous-estimation des concentrations est de l'ordre de 33 %. Elle introduit une augmentation de la marge d'erreur à ce niveau qui reste inférieure à la précision donnée par le compteur pour les concentrations mesurées.

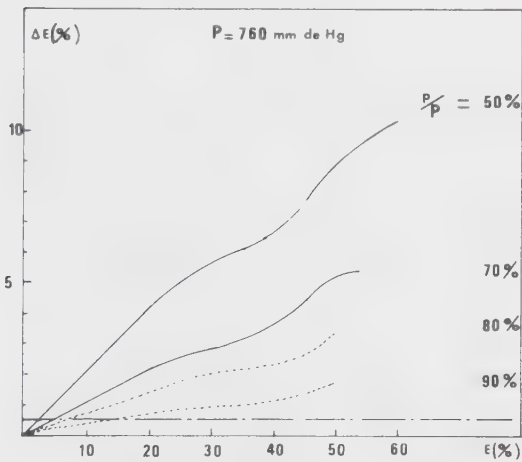


FIGURE 5 : Effet de la pression sur l'extinction du faisceau lumineux lors de la détente.
— : calculé à partir des courbes de NOLAN et SCOTT
---- : estimé en posant que l'influence de la pression est proportionnelle entre 0 et 70 %
--- : précision donnée par le compteur $\Delta E = (0,5 \%)$.

Au niveau 2500 mètres, la sous-estimation est moindre, de l'ordre de 10 %.

Pour les niveaux inférieurs (0-1000 mètres) la sous-estimation sur la concentration moyenne mesurée dans la couche est de l'ordre de 3 %.

L'influence de la pression, sur les résultats obtenus à partir des mesures effectuées dans la couche (0-2500 mètres) se traduit par une sous-estimation comprise entre 3 et 6%. Comme nous le verrons plus loin, leur précision varie entre 30 et 50 %. J'ai par conséquent, négligé en première approximation l'influence de la pression sur les mesures faites à ces niveaux. Pour les niveaux supérieurs, j'ai mentionné dans chacun des cas, l'influence de ce facteur.

I.6 - Conclusion

L'originalité de l'appareil réside dans la miniaturisation et dans l'autonomie qui permettent un emploi aisé sur le terrain.

Le taux de détente est de 1,36, il permet de caractériser les particules de rayon supérieur à 7.10^{-8} cm, avec une sensibilité de l'ordre de 300 particules cm^{-3} . Il est possible en faisant varier le taux de détente d'obtenir une discrimination en taille des noyaux. L'étalonnage théorique qui a été mis au point sera dans ce cas très

utile, l'étalonnage expérimental étant délicat.

L'utilisation d'un tel appareil offre de nombreux débouchés tant au point de vue étude fondamentale en physique de l'atmosphère que du point de vue applications industrielles, dans lesquelles il peut jouer un rôle important pour la surveillance de la pollution et pour la protection des travailleurs dans les industries de matériaux finement divisés (ciments, poudres, peintures...).

II. DETERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES : MESURE DU COEFFICIENT DE DIFFUSION MOYEN

Le spectre dimensionnel des particules est une des caractéristiques physiques essentielle souvent délicate à déterminer. La granulométrie des aérosols peut varier suivant leur origine et leur mode de formation depuis quelques Å jusqu'à quelques dizaines de microns. Quelques exemples caractéristiques sont donnés sur le tableau 1, annexe 1. En général, un aérosol ne se présente pas sous forme monodispersée, mais sous forme d'une distribution granulométrique (distribution gaussienne ou normale, log-normale). Aucune méthode globale ne permet de caractériser la taille des particules, seules des méthodes spécifiques s'adressant à telle ou telle classe de particules peuvent être utilisées. Un condensé de ces différentes méthodes est donné sur le tableau 1, annexe 1.

Dans le cas des aérosols atmosphériques, le spectre dimensionnel se présente sous la forme d'une distribution $dN/d(\log r)$ avec un maximum pour des dimensions de l'ordre de quelques 10^{-6} cm et une décroissance de la forme Cr^{-2} au-delà du maximum (β : constante dont la valeur est de l'ordre de 3) (JUNGE, 1963 ; FRIEDLANDER, 1960 ; CADLE, 1966 ; WHITBY, 1972 ; BRICARD, 1972a ; RENOUX, 1973a). Dans la gamme de dimension inférieure à 10^{-6} cm, les mesures expérimentales sont plus rares et plus délicates. Il semble que la forme du spectre, avec en particulier l'apparition de maxima, soit liée au lieu de prélèvement (JUNGE, 1971 ; WHITBY, 1972 ; BRICARD, 1972a ; RENOUX, 1973b). Les différences observées entre zone polluées et non polluées peuvent être dues, comme il est signalé dans le chapitre IV, § IV, aux différents modes de formation et d'évolution des noyaux.

On attribue une dénomination différente à ces particules suivant leur taille : noyaux d'Aitken ($r < 10^{-5}$ cm) ; gros noyaux ($10^{-5} < r < 10^{-4}$ cm) ; noyaux géants ($r > 10^{-4}$ cm) (tableau 2, annexe 1) (r représente le rayon des particules).

Dans l'étude que je présente, j'ai utilisé une technique de mesure de la dimension moyenne de l'aérosol atmosphérique, basée sur la détermination du coefficient de diffusion moyen. Les dimensions ainsi obtenues seront représentatives de la taille moyenne des noyaux d'Aitken.

D'autre part des techniques différentes ont été testées, en collaboration avec des laboratoires extérieurs : diffraction de rayons X aux petits angles (1), microscopie électronique (2). Les résultats de ces études sont en général négatifs pour l'étude des noyaux d'Aitken atmosphériques étant donné la faible concentration pondérale qu'ils représentent (diffraction de RX aux petits angles) et leur instabilité sous l'action du faisceau électronique.

II.1 - Relations entre le coefficient de diffusion et la dimension des particules

Les particules neutres ou chargées sont caractérisées par leur coefficient

(1) Laboratoire de la Compagnie Générale de Radiologie, Issy-les-Moulineaux.

(2) Laboratoire de Microscopie Electronique du C.N.R.S., ...

de diffusion D , représentatif du mouvement brownien. Il n'existe pas de loi générale reliant le paramètre D à la taille de la particule, mais seulement des relations valables dans un domaine restreint (particules plus petites ou plus grande que le libre parcours moyen des molécules gazeuses).

- Pour des particules de rayon $\ll$ libre parcours moyen des molécules gazeuses ($6,5 \cdot 10^{-6}$ cm dans les conditions normales de température et de pression) on utilise la formule déduite de la théorie cinétique des gaz LANGEVIN (1905) :

$$D = \frac{3\sqrt{2}}{16 n' \sigma^2 \sqrt{\pi}} \left(KT \left(\frac{m + m_i}{m \cdot m_i} \right) \right)^{1/2}$$

σ : rayon de la sphère d'action

n' : nombre de particules par unité de volume

m et m_i : respectivement : masse de la molécule de gaz et de la particule

K et T : respectivement : constante de Boltzmann et température absolue.

- Pour des particules de rayon $\gg$ libre parcours moyen des molécules gazeuses, on utilise la formule de Stokes :

$$D = \frac{KT}{6\pi\eta r}$$

η : viscosité de l'air

r : rayon de la particule

- Pour des particules dont le rayon est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des molécules gazeuses, on utilise la formule empirique de Stokes-Cunningham corrigée par Millikan :

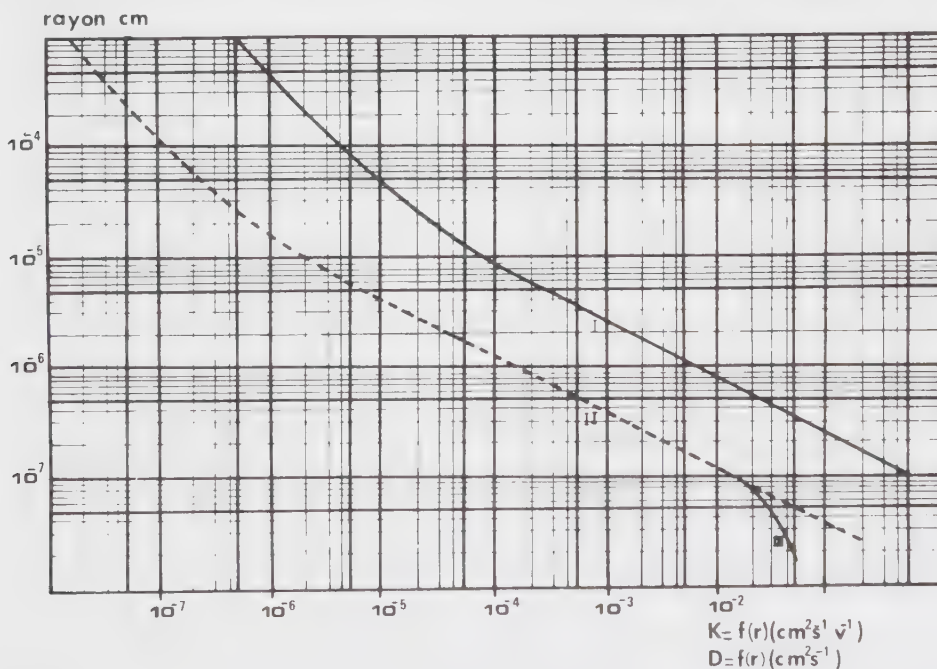


FIGURE 6 : Courbes de variation de la mobilité (K) (courbe I) et du coefficient de diffusion brownien (D) (courbe II pour les particules neutres ; courbe III pour les particules chargées) établies pour une température de 25°C et une pression de 760 mm de Hg, en fonction du rayon des particules.

$$D = \frac{KT}{6\pi\eta r} \left(1 + 0,86 \frac{\lambda^+}{r} + 0,29 \frac{\lambda^+}{r} e^{-1,42 \frac{r}{\lambda^+}} \right)$$

λ^+ : libre parcours moyen des molécules gazeuses.

Les variations du coefficient de diffusion, en fonction du rayon de la particule dans le cas de l'air ($T^\circ = 25^\circ\text{C}$, pression 1 atmosphère) sont présentées sur la courbe II, figure 6. Pour des noyaux de rayon inférieur à 10^{-7}cm , ce coefficient diffère suivant que la particule est chargée ou neutre. La courbe III de la figure 6 rend compte de ce fait.

II.2 - Mesure du coefficient de diffusion - Batterie de diffusion

Lorsqu'un flux de particules s'écoule au travers de canaux, sa concentration décroît par suite de la diffusion vers les parois. Les calculs théoriques relatifs à ces pertes par diffusion ont été effectués par TOWNSEND (1900), GORMLEY et KENNEDY (1949), DE MARCUS et THOMAS (1952) et récemment par TWOMEY (1962) et TAN (1974).

Les hypothèses de base pour le calcul sont:

- la diffusion intervient seule ;
- le régime dans la batterie est laminaire et établi (1) ;
- on peut caractériser les particules par une seule valeur D ;
- la concentration en particules est constante à l'entrée de la batterie ;
- les particules frappant les parois restent collectées.

A. CANAUX CYLINDRIQUES

GORMLEY et KENNEDY (1949) donnent :

$$\frac{n}{n_c} = 0,819 e^{-\alpha} + 0,0975 e^{-6,1\alpha} + 0,0325 e^{-16\alpha}$$

$$\alpha = 3,66 \cdot D \cdot z \cdot x / Q$$

n_c : concentration en particules dans l'air

n : concentration en particules non captées par la batterie de diffusion

D : coefficient de diffusion de la particule

z : longueur des tubes

x : nombre de tube

Q : débit total de l'air.

Pour des valeurs de α inférieures à $4 \cdot 10^{-2}$, l'équation de LEVEQUE (1928) est plus précise.

$$\frac{n}{n_c} = 1 - \frac{1}{3} \alpha + \frac{1}{15} \alpha^2 - \frac{1}{42} \alpha^3 + \frac{1}{126} \alpha^4 - \frac{1}{252} \alpha^5$$

$$\mu = \alpha/3,66$$

(1) On admet que le régime est laminaire pour un nombre de Reynolds inférieur à 1000. La longueur d'établissement du régime dans un tube est donnée par la relation :

$l_{et.} = 0,056 Re \cdot b$ (avec : Re : nombre de Reynolds ; b : rayon du tube).

B. CANAUX RECTANGULAIRES

DE MARCUS (1952) donne :

$$\frac{n}{n_0} = 0,915 e^{-\beta} + 0,059 e^{-11,8\beta} + 0,026 e^{-80\beta}$$

$$\beta = 3,77 b D z x/a Q$$

D : coefficient de diffusion des particules

b : largeur des canaux

z : longueur des canaux

2a : hauteur des canaux

x : nombre de canaux

Q : débit total de l'air.

C. DETERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES

Dans le cas d'un aérosol monodispersé, la mesure de n/n_0 permet d'obtenir le coefficient de diffusion, donc la taille des particules (les concentrations n et n_0 sont déterminées à l'aide du compteur précédemment décrit).

Dans le cas de particules polydispersées le spectre dimensionnel ne peut être obtenu sans faire d'hypothèses particulières sur la distribution (FUCHS, 1962 ; TWOMEY, 1963 ; THOMAS, 1966). Pour chaque débit d'aspiration, on obtient un coefficient de diffusion différent, appelé coefficient de diffusion apparent. POLLAK et METNIEKS (1957) ont montré que le coefficient de diffusion apparent tendait vers le coefficient de diffusion moyen lorsque le débit tendait vers l'infini. Lorsque la répartition granulométrique des particules n'est pas trop dispersée, la mesure du coefficient de diffusion apparent, pour un débit d'aspiration supérieur à une certaine valeur (Q_e), fournit une valeur approchée du coefficient de diffusion moyen.

D. BATTERIE DE DIFFUSION

Deux batteries de diffusion ont été réalisées, les caractéristiques de chacune d'entre elles sont données sur le tableau 5.

Objectif	Nombre de canaux	Longueur des canaux	Géométrie des canaux	Débit d'aspiration utilisé
Granulométrie moyenne de l'aérosol atmosphérique (1)	200	35 cm	rectangulaire larg. = 10cm haut.=0,05cm	20 l/mm
Détermination de la fraction de particules ultra-fines: $10^{-2} \text{cm}^2 \text{s}^{-1} < D < 10^{-1} \text{cm}^2 \text{s}^{-1}$	60	200 cm	cyindrique $\phi = 1,8 \text{ mm}$	15 l/mm

(1) sensiblement identique à celle utilisée par RENOUX (1965)

TABLEAU 5 : Caractéristiques des batteries de diffusion utilisées.

Sur les figures 7 et 8 sont portées les variations de la perméabilité (n/n_0) de chacune de ces batteries, en fonction du coefficient de diffusion des particules pour différents débits d'aspiration.

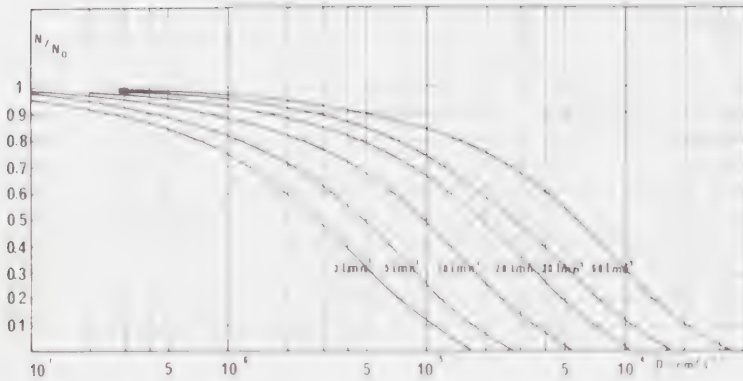
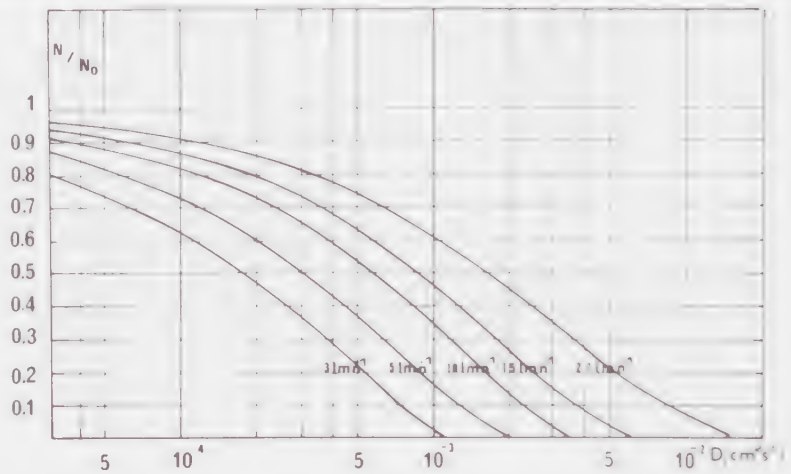


FIGURE 7 : Perméabilité de la batterie de diffusion constituée de 200 plaques parallèles espacées de $5/10^0$ de mm en fonction du coefficient de diffusion des particules et du débit d'air.

FIGURE 8 :

Perméabilité de la batterie de diffusion constituée de 60 tubes ($\phi = 1,8$ mm) de 2 mètres de long en fonction du coefficient de diffusion des particules et du débit d'air.



II.3 - Limite de la méthode

La détermination du coefficient de diffusion comme méthode d'analyse granulométrique n'est utilisée en général que pour des aérosols de taille inférieure à 10^{-5} cm. Pour des particules de taille supérieure, le coefficient de diffusion est faible ($< 2 \cdot 10^{-6}$ cm²s⁻¹), sa détermination devient délicate, d'autres méthodes sont alors utilisées, telle la diffusion de lumière.

III. MESURE DES PARAMETRES ELECTRIQUES : CONCENTRATIONS EN PETITS IONS ET GROS IONS

Les particules électriquement chargées sont caractérisées par leur mobilité k , telle que :

$$k = \frac{V}{E}$$

V : vitesse que prend l'ion (en cm s⁻¹) sous l'action d'un champ électrique E (en volt cm⁻¹)

k : s'exprime en cm²s⁻¹v⁻¹

La relation d'Einstein permet de relier le coefficient de diffusion D à la mobilité k :

$$D = \frac{kT}{e}$$

K : constante de Boltzman

T : température absolue

e : charge élémentaire

En remplaçant les constantes par leurs valeurs numériques, on obtient :

$$D = 2,5.10^{-2}k$$

$$\text{ou : } k \neq 40 D$$

Les valeurs de la mobilité en fonction du rayon de la particule dans l'air ($T^\circ = 25^\circ\text{C}$; pression = 1 atmosphère) sont données sur la courbe I de la figure 6.

En fonction de l'altitude, la mobilité des petits ions ($k > 0,4 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}\text{V}^{-1}$) varie en première approximation suivant la loi :

$$\frac{k_h}{k_o} = \frac{P_o}{P_h} \frac{T_h}{T_o}$$

k_h et k_o représentent respectivement la mobilité des particules à l'altitude h et au sol
 P_h et P_o " " la pression à l'altitude h et au sol
 T_h et T_o " " la température à l'altitude h et au sol.

III.1 - Ions atmosphériques

Dans le cas des aérosols atmosphériques, on distinguera (tableau 2, annexe 1) :

- les petits ions : Leur dimension est inférieure à 10^{-7}cm . Les mesures de HUERTAS (1972), BRICARD (1972b), RENOUX (1965) montrent pour les particules positives un spectre de mobilité discret compris entre 2,1 et $0,4 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}\text{V}^{-1}$. Pour les petits ions négatifs, ces valeurs sont supérieures d'un facteur variant de 1,2 à 1,5.

- les gros ions : Ils correspondent aux noyaux d'Aitken électriquement chargés, leur mobilité est supérieure à $8.10^{-5} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}\text{V}^{-1}$.

III.2 - Généralités sur la précipitation électrostatique

On capte les ions par passage dans un champ électrique appliqué entre les armatures d'un condensateur. Tous les ions de mobilité k, supérieure à une mobilité limite k_{l1} , qui traversent le précipitateur sont piégés. Ils créent un courant sur l'électrode interne du précipitateur que l'on mesure à l'aide d'un électromètre.

Dans le cas d'un précipitateur électrostatique cylindrique avec un régime d'écoulement laminaire et établi, l'expression de la mobilité limite k_{l1} est donnée par :

$$k_{l1} = \frac{Q}{2\pi U_1 l} \text{ Log } \frac{b}{a} \quad (3)$$

Q : débit de l'air

U_1 : différence de potentiel entre les armatures du précipitateur

l : longueur utile du précipitateur

a : rayon de l'électrode interne

b : rayon de l'électrode externe.

Un ion de mobilité k' inférieure à k_{l1} mais arrivant dans le précipitateur à une distance inférieure à b peut être capté. La proportion d'ions incidents captés par le précipitateur a été calculée par MADELAINE (1966).

$$F_r = \frac{A}{\Delta r} \left\{ \text{Log } \left(\frac{r+\Delta r}{r} \right) + \frac{\Delta r}{r(r+\Delta r)} \right\} \quad (4)$$

$$F = \frac{2 - 1}{6 \cdot \log \frac{r}{r_1}} \frac{Q_1}{r} = \frac{e}{6 \cdot k_{11}}$$

e : charge électrique élémentaire

η : coefficient de viscosité de l'air = $1,7 \cdot 10^{-4}$ poise

β : constante fonction de la pression atmosphérique = $8,1 \cdot 10^{-6}$ pour 1 atmosphère

r : rayon de la particule correspondant à k_{11}

Δr : intervalle de dimension dans lequel on étudie le pourcentage de particules piégées.

A la limite, lorsque $\Delta r \rightarrow 0$, cette expression s'écrit sous la forme

$$F_r = A \left(\frac{1}{r} + \frac{\beta}{r^2} \right) \quad (5)$$

Expérimentalement, le débit de l'air et le champ électrique sont limités, en effet :

- le régime d'écoulement doit être laminaire, mais par ailleurs suffisant pour que le courant recueilli sur l'électrode axiale du précipitateur soit mesurable ;
- on ne peut augmenter démesurément la tension appliquée entre les armatures du condensateur, car des phénomènes d'effluve pourraient se produire. Dans les conditions expérimentales, j'ai opéré avec un champ électrique inférieur à $1000 \text{ volts cm}^{-1}$.

III.3 - Réalisation des précipitateurs électrostatiques

A. PRÉCIPITATEURS ÉLECTROSTATIQUES DESTINÉS À LA MESURE DES PETITS IONS

Deux précipitateurs identiques ont été réalisés pour les petits ions positifs et négatifs. La figure 9 en donne le schéma de principe. Le champ électrique appliqué entre les armatures du condensateur est tel que tous les ions de mobilité supérieure à $0,4 \text{ cm}^2 \text{s}^{-1} \text{V}^{-1}$ soient piégés. Le courant recueilli sur l'électrode axiale est mesuré à l'aide d'un électromètre dont le circuit masse est isolé du châssis, ce qui permet de porter à la tension l'électrode de mesure et de mieux définir le champ électrique, en particulier aux extrémités.

La mobilité limite de captation obtenue en remplaçant les différents termes de l'équation (3) par leur valeur numérique, est donnée par l'expression

$$k_{11} = 2,02 \cdot 10^{-3} \frac{Q}{U} \quad (\text{cm}^2 \text{s}^{-1} \text{V}^{-1})$$

Q : débit de l'air en $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$

U : différence de potentiel entre les armatures du condensateur (en volts).

Le même ensemble a été utilisé pour les mesures en altitude et au sol.

En altitude, les précipitateurs sont disposés sous l'aile de l'avion, le passage de l'air se fait grâce à la vitesse de l'avion. Les cones d'entrée et sortie que l'on dispose dans ce cas, permettent de réduire la vitesse d'écoulement dans un rapport 3,63. Pendant la mesure, la vitesse de l'avion par rapport à l'air est enregistrée, elle est en général voisine de 46 m s^{-1} , ce qui correspond à un nombre de Reynolds dans le précipitateur de l'ordre de 8000.

Le profil de vitesse à l'intérieur du précipitateur a été étudié en soufflerie. Un exemple est donné sur la figure 10 avec une vitesse de l'air à l'extérieur du précipitateur de 40 m s^{-1} . Des mesures au sol n'ont pas mis en évidence de différence sensible inhérente au nombre de Reynolds élevé.

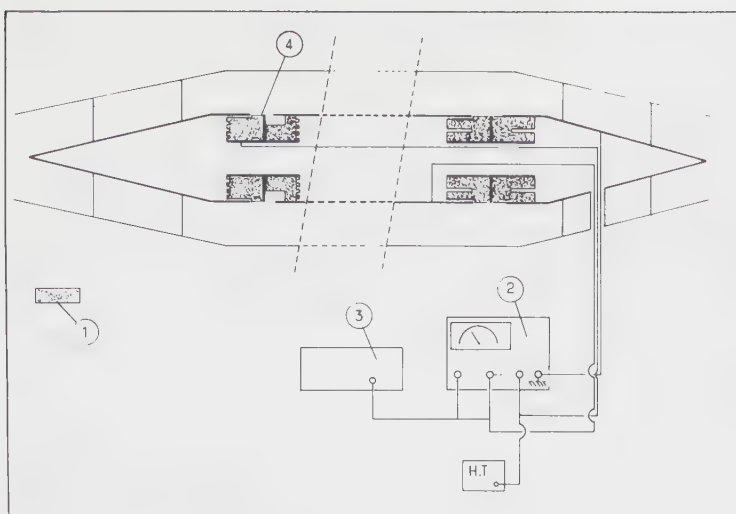


FIGURE 9 : Installation de mesure des petits ions.
1. Isolant ; 2. électromètre ; 3. enregistreur ;
4. anneau de garde.

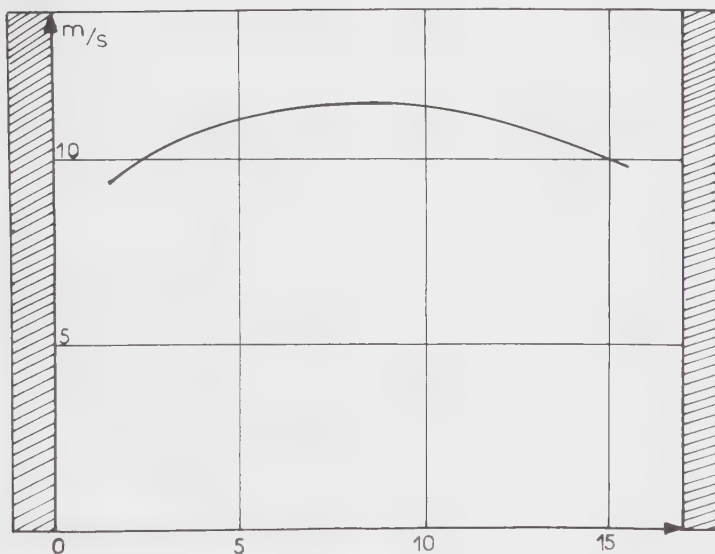


FIGURE 10 : Profil de vitesses à l'intérieur du précipitateur électrostatique. Vitesse de l'air à l'extérieur du précipitateur 40 m s^{-1} .

Pour chaque niveau de prélèvement, la tension appliquée entre les armatures du condensateur est ajustée de façon à maintenir la mobilité limite de captation à la valeur de $0,4 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$ ramenée au niveau du sol. Ces valeurs de la tension calculées pour différentes altitudes et pour une vitesse de l'avion de 46 m s^{-1} sont portées sur le tableau 6.

Au niveau du sol, on utilise un débit d'aspiration de $34 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ et une tension inter-électrode de 50 volts.

Pour chacune des caractéristiques de fonctionnement, j'ai déterminé à

partir de la relation (5) l'efficacité de captation des précipitateurs électrostatiques (figure 11). Le rayon moyen des aérosols atmosphériques est de l'ordre de $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ (chapitre IV, §.V). L'efficacité de captation pour de telles particules dans le précipitateur est négligeable (inférieure à 10^{-3}).

Dans ces conditions, on détermine en première approximation la concentration en petits ions (n) par l'expression :

$$n = \frac{I}{e Q}$$

I : intensité du courant recueilli sur l'électrode interne du précipitateur
e : charge des particules ($1,6 \cdot 10^{-19} \text{cb}$)
Q = débit de l'air

Altitude (mètres)	500	750	1000	2000	3000	4000	5000
Tension (volts)	200	195	192	180	167	145	127

TABLEAU 6 : Tension appliquée entre les armatures du précipitateur électrostatique destiné à la mesure des petits ions. Elle est calculée pour maintenir une mobilité limite de captation de $0,4 \text{ cm}^2 \text{s}^{-1} \text{v}^{-1}$ et pour une vitesse de l'avion de 40 m s^{-1} .

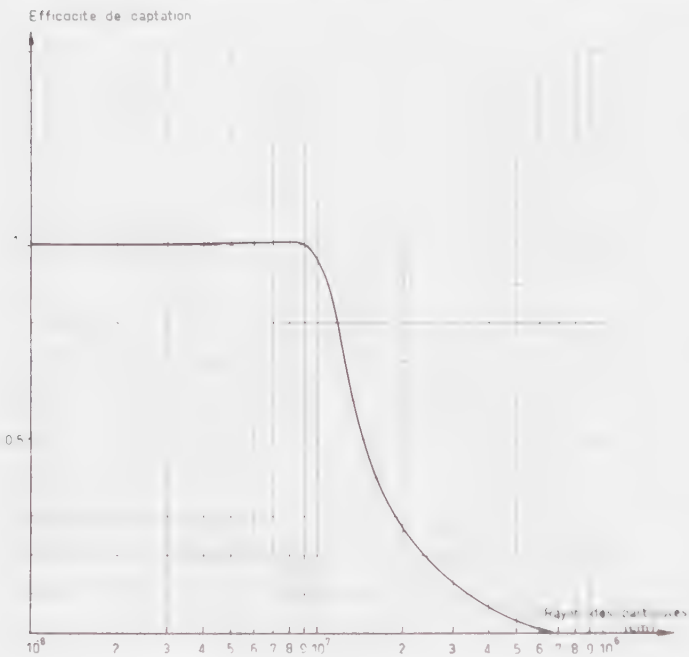


FIGURE 11 : Efficacité de captation du précipitateur électrostatique de petits ions avec une mobilité limite de captation $k_{l1} = 0,4 \text{ cm}^2 \text{s}^{-1} \text{v}^{-1}$.
à la mesure des gros ions ;

$$k_{l1} = 6,7 \cdot 10^{-3} \frac{Q}{U}$$

pour le précipitateur destiné à capter les petits ions.

Les caractéristiques de fonctionnement pour nos mesures sont

- débit d'aspiration : $1,5 \text{ m}^3 \text{h}^{-1}$;
- tension inter-électrode : 400 volts ;
- tension inter-électrode du premier précipitateur : 7 volts.

Dans ces conditions, tous les ions de mobilité $3 \cdot 10^{-4} < k < 0,4 \text{ cm}^2 \text{s}^{-1} \text{v}^{-1}$, c'est-à-dire de dimension $10^{-7} < r < 4,5 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ sont captés.

Le rayon moyen des aérosols atmosphériques étant de l'ordre de $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$,

B. PRÉCIPITATEUR ELCC

Le schéma de principe de l'ensemble est donné sur la figure 12. L'air qui pénètre dans le condensateur de mesure passe au préalable dans un premier précipitateur destiné à capter les petits ions.

Le principe de la mesure est identique au précédent, seules les dimensions et les caractéristiques de fonctionnement diffèrent.

La mobilité limite de captation, obtenue en remplaçant les termes de l'équation (3) par leur valeur numérique est donnée par l'expression

$$k_{l1} = 2,9 \cdot 10^{-3} \frac{Q}{U}$$

pour le précipitateur destiné

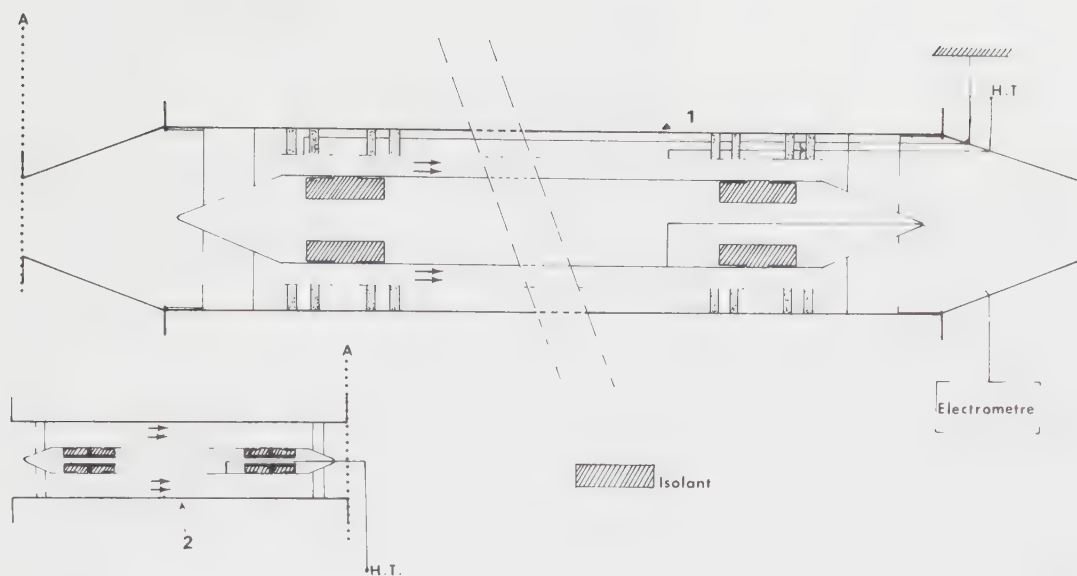


FIGURE 12 : Schéma de principe du précipitateur électrostatique destiné à la mesure des gros ions. 1/ captation des gros ions ; 2/ captation des petits ions.

je pose, comme dans le cas précédent du précipitateur à petits ions, que la concentration en gros ions (N) est donnée en première approximation par la relation :

$$N = \frac{I}{e Q}$$

I : intensité recueillie sur l'électrode interne du précipitateur
 e : charge électrique des particules supposée unitaire = $1,6 \cdot 10^{-19}$ cb
 Q : débit de l'air.

On définit en fait les gros ions atmosphériques comme des particules de rayon inférieur à 10^{-5} cm. Cela conduit à une sous-estimation de la concentration déterminée à l'aide du précipitateur que j'ai réalisé.

Dans le cas du spectre granulométrique des aérosols atmosphériques donné par JUNGE (1963), on montre que cette sous-estimation est inférieure à 10 %.

-:- -:-
 -:-

CHAPITRE I I

MÉTHODES DE MESURE DE L'INTENSITÉ DES SOURCES DE NOYAUX D'AITKEN.

APPLICATION À QUELQUES-UNES DES PRINCIPALES SOURCES NATURELLES ET ARTIFICIELLES DU SUD-OUEST DE LA FRANCE, (1)

Il existe dans l'atmosphère deux types de sources de noyaux d'Aitken, celles d'origine naturelle, liées à des réactions de transformation sur des constituants mineurs gazeux provenant du sol ou de la végétation, et celles d'origine artificielle liées à la pollution industrielle et domestique. Il est difficile actuellement de connaître l'importance relative de ces différentes sources.

Je présente dans ce chapitre trois méthodes de détermination de l'intensité des sources de noyaux d'Aitken. Elles sont basées sur l'étude des répartitions verticales des noyaux dans l'atmosphère. Elaborées suivant des principes différents (détermination du flux de particules à l'intérieur d'un panache, évolution de la répartition verticale des noyaux dans une masse d'air en fonction du temps ou de la distance qu'elle a parcourue au-dessus d'une source) chacune d'entre elles est spécifique pour l'étude d'un type géométrique de source (source de dimension réduite : agglomérations, complexes industriels par exemple (chapitre II, §.I); source de grande superficie : zone de végétation par exemple (chapitre II, §. II et III)).

Ces méthodes de mesure ont été appliquées à quelques-unes des principales sources de noyaux de la région du Sud-Ouest de la France : agglomération de Toulouse de 400 000 habitants, complexe industriel de Lacq, végétation de résineux dans la forêt des Landes, zone rurale de la région Midi-Pyrénées.

Moyens expérimentaux :

Les mesures sont faites par période de temps clair à l'aide d'un avion : Cessna TU 206, équipé :

- pour l'enregistrement en continu des paramètres météorologiques : température, humidité, point de rosée. Direction et intensité du vent sont mesurées par radar Doppler ;

- pour la mesure des concentrations de noyaux :

- . d'un compteur dont les caractéristiques ont été données au chapitre I (§.I). La fréquence des prélèvements, 1 par minute, correspond à une mesure intégrée sur une distance de l'ordre de 2,500 km (vitesse de l'avion de l'ordre de 150 km/h);

- . J'ai utilisé dans certains cas, pour des études de panache (Chapitre II, §.I) un ensemble de précipitateurs électrostatiques destinés à la mesure de la concentration en petits ions positifs et négatifs, dont les caractéristiques ont été données (chapitre I, §.III). Cette méthode indirecte pour la détermination du nombre de noyaux d'Aitken présente l'avantage d'une constante de temps de l'ordre de la seconde, ce qui

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication acceptée au *Journal of Atmospheric Environment* (A. LOPEZ, J. SERVANT, J. FONTAN, 1974b).

correspond à une résolution de l'ordre de 40 mètres. En considérant que le rayon moyen des particules dans le panache ne varie pas, on montre qu'à l'équilibre la concentration en petits ions (n) est inversement proportionnelle à la concentration en noyaux (N) (chapitre V, §.II).

$$n = \frac{a}{N} \quad (6)$$

La constante de proportionnalité a , dépend de l'intensité d'ionisation et de la dimension des particules. Elle est déterminée expérimentalement, pour chaque palier de prélèvement, en comparant en un point les concentrations en petits ions et en noyaux mesurées simultanément.

I. SOURCE DE NOYAUX QUASI-PONCTUELLE CONTRIBUANT A L'ETABLISSEMENT D'UN PANACHE : CAS DES AGGLOMERATIONS ET COMPLEXES INDUSTRIELS

Considérons une source de noyaux, située près du sol, d'intensité constante en fonction du temps. Diffusion et advection contribuent à l'établissement d'un panache (figure 13).

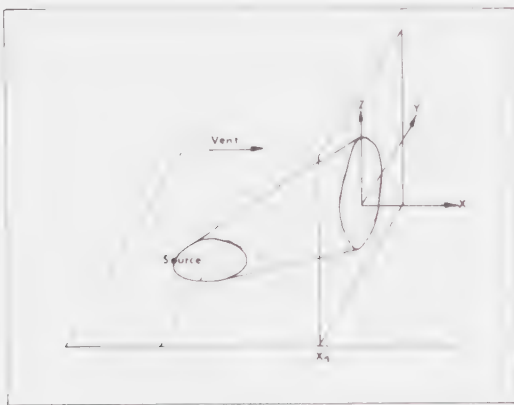


FIGURE 13 : Schéma de principe de la méthode de détermination du flux de particules dans un panache.

I.1 - Principe de la méthode

On détermine, à l'aide d'un avion, la répartition des concentrations en particules dans une section droite du panache située à la distance x_1 de la zone d'émission. Ces concentrations sont obtenues, par des paliers de mesure à différentes altitudes, en coupant la zone polluée perpendiculairement à la direction du vent. Elles permettent de reconstituer le panache et, connaissant la vitesse du vent, de déterminer le flux de particules à travers la section droite considérée. Ce flux dépend de l'intensité de la source, de la formation et de la disparition des noyaux dans le panache.

Le flux de particules à travers une section droite du panache, située à la distance x_1 de la source, s'écrit :

$$\Phi_{x_1} = \int_{-y_1}^{y_1} \int_{z_1}^{z_2} C_{x_1}(y,z) V_{x_1}(z) dy dz$$

- $C_{x_1}(y,z)$: concentration volumique de noyaux dans le plan x_1 , à l'intérieur du panache
- $C_{x_1,0}(z)$: concentration volumique de noyaux dans le plan x_1 , à l'extérieur du panache. Cette valeur qui correspond au bruit de fond particulière est considérée constante sur un palier de mesure
- $V_{x_1}(z)$: vitesse du vent perpendiculaire au plan x_1 .

L'intégrale est limitée, suivant l'axe des y par la largeur du panache, suivant l'axe des z , en général durant la journée, par une couche stable au niveau

supérieur de la couche de mélange.

L'équation intégrale (7) se transforme en expression sommable de la forme :

$$\phi_{x_1} = \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n (\overline{C_{x_1}}(i,j) - \overline{C_{x_1,0}}(j)) \overline{V_{x_1}}(j) \Delta y \cdot \Delta z \quad (8)$$

Δy : distance entre deux points de mesure sur un palier de prélèvement. Elle dépend de la vitesse de l'avion et de la constante de temps de l'appareil de mesure

Δz : altitude entre deux paliers de mesure, en général 150 mètres

$\overline{C_{x_1}}(i,j)$: concentration volumique moyenne sur la distance Δy , mesurée dans le panache au point de coordonnées i (axe des y), j (axe des z)

$\overline{C_{x_1,0}}(j)$: concentration volumique moyenne, en dehors du panache sur le palier de mesure de coordonnée j

$\overline{V_{x_1}}(j)$: vitesse moyenne du vent dans la couche j d'épaisseur Δz .

Les résultats obtenus par l'utilisation d'une expression sommable seront d'autant plus précis que le nombre de points de mesure à l'intérieur du panache sera grand. Ce nombre dépend, suivant l'axe des y , de la largeur de la zone polluée, de la vitesse de l'avion (dont la marge de variation est réduite) et de la constante de temps de l'appareil de prélèvement ; suivant l'axe des z , du pas entre deux paliers de mesure.

Précision sur la détermination du flux :

Un calcul d'erreur à partir de l'expression (8) donne :

$$\frac{\Delta \phi_{x_1}}{\phi_{x_1}} = \frac{\sum_{j=1}^m \left\{ \left(\sum_{i=1}^n (\overline{C_{x_1}}(i,j)) - n \overline{C_{x_1,0}}(j) \right) \Delta \overline{V_{x_1}}(j) + \overline{V_{x_1}}(j) \Delta \left(\sum_{i=1}^n (\overline{C_{x_1}}(i,j)) \right) \right\}}{\sum_{j=1}^m \left(\sum_{i=1}^n (\overline{C_{x_1}}(i,j)) - n \overline{C_{x_1,0}}(j) \right) \overline{V_{x_1}}(j)} + \frac{\Delta(\Delta y)}{\Delta y} + \frac{\Delta(\Delta z)}{\Delta z}$$

En considérant un vent d'intensité constante sur la hauteur de zone polluée ($\overline{V_{x_1}}(j) = V$) et l'erreur absolue sur la teneur en noyaux étant sensiblement proportionnelle à la concentration (tableau 3) cette expression peut s'écrire en première approximation sous la forme :

$$\frac{\Delta \phi_{x_1}}{\phi_{x_1}} = \frac{\Delta V}{V} + \frac{\Delta C_{Mx_1}}{C_{Mx_1} - C_{Mx_1,0}} + \frac{\Delta C_{Mx_1,0}}{C_{Mx_1} - C_{Mx_1,0}} + \frac{\Delta(\Delta y)}{\Delta y} + \frac{\Delta(\Delta z)}{\Delta z} \quad (9)$$

C_{Mx_1} : concentration volumique moyenne dans le panache

$C_{Mx_1,0}$: concentration volumique moyenne à l'extérieur du panache sur une hauteur correspondant à l'épaisseur de la zone polluée.

Les différentes erreurs expérimentales portent :

- sur l'intensité du vent donnée par le Radar Doppler installé à bord de l'avion, l'erreur relative est de l'ordre de 15 % ;

- sur la distance parcourue entre deux points de mesure, due essentiellement à la variation de vitesse de l'avion, on l'estime à 5 % ;
- sur l'altitude du palier de prélèvement, de l'ordre de 5 % ;
- sur la détermination des concentrations en particules (tableau 3).

On distingue dans l'expression (9) deux termes : le premier lié à l'avion proprement dit se traduit dans tous les cas par une erreur relative de l'ordre de 25%, le second se rapportant à la mesure de la concentration en noyaux est d'autant plus faible que la teneur mesurée est grande.

On remarque dans le calcul exposé ci-dessus que les limites géométriques du panache sont supposées parfaitement définies. En fait, lorsque les concentrations à l'intérieur du panache sont grandes par rapport à celles extérieures à la zone, de façon que :

$$\Delta C_{Mx_1} + \Delta C_{Mx_{1,0}} \ll C_{Mx_1} - C_{Mx_{1,0}} \quad (10)$$

l'erreur supplémentaire introduite par cette hypothèse peut être négligée devant les valeurs précédentes.

Par contre, lorsqu'elles sont faibles, l'inégalité ci-dessus n'est pas vérifiée. Une source d'erreur supplémentaire non négligeable, mais difficile à estimer peut s'ajouter aux valeurs précédentes. Dans ces cas la précision sur les mesures est faible.

1.2 - Flux de particules issues de l'agglomération de Toulouse

L'agglomération de Toulouse est située à 250 km de la Côte Atlantique, à 200 km de la côte méditerranéenne, à 150 km au Nord des Pyrénées. Elle compte une population de 400 000 habitants pour une superficie de 110 km². Sa largeur est du Nord au Sud 15 km ; d'Est en Ouest 13 km; son périmètre 71 km.

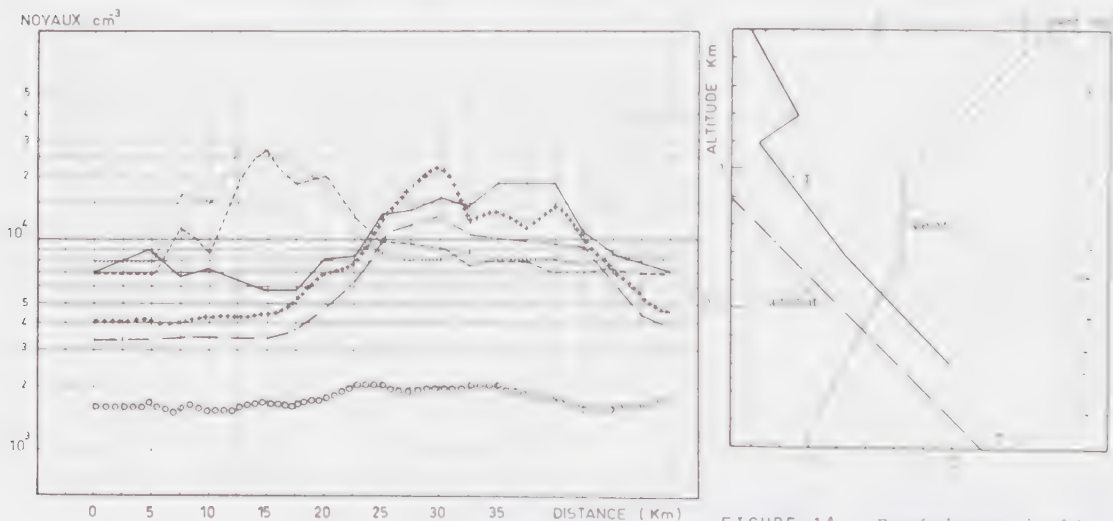


FIGURE 14 : Expérience du 18 et 19 mai 1971 dans le panache de l'agglomération de Toulouse à 10 kilomètres du centre de la ville. (---) : palier de mesure à 300 m ; (....) : 450 m ; (—) : 600 m ; (++) : 750 m ; (— —) : 1000 m ; (oooo, 1200 m.

ration de Toulouse à 10 kilomètres du centre de la ville. (---) : palier de mesure à 300 m ; (....) : 450 m ; (—) : 600 m ; (++) : 750 m ; (— —) : 1000 m ; (oooo, 1200 m.

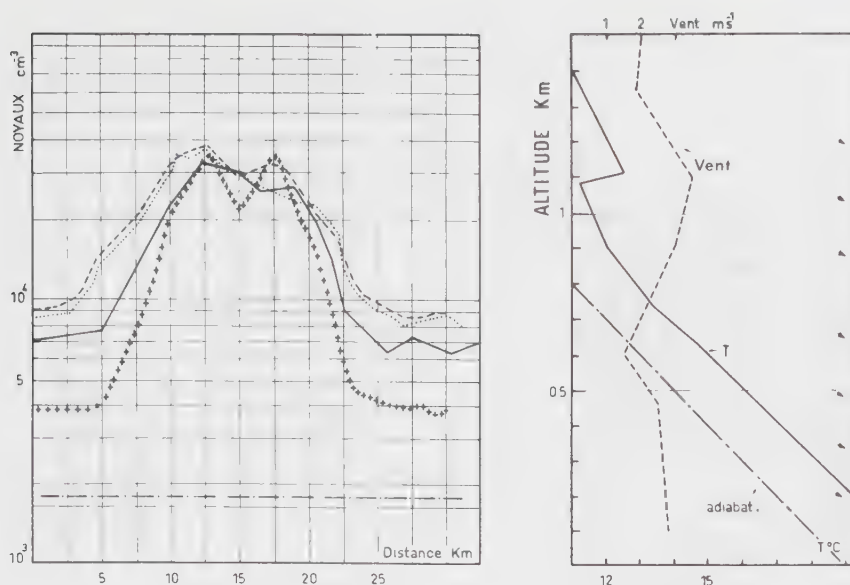


FIGURE 15 : Expérience du 8/09/72, dans le panache de l'agglomération de Toulouse à 10 kilomètres du centre de la ville.
Palier de mesure : (---) : à 150 m ; (....) : à 300 m ; (—) : à 600 m ; (+++++) : à 900 m ; (— · — · —) : à 1200 m.

Les figures 14 et 15 correspondent à deux exemples caractéristiques obtenus les 26/11/71 et 08/09/72 à une distance de 10 km du centre de la ville. Le 26/11/71 on note au-dessus de 600 mètres un changement dans la direction du vent qui provoque un déplacement vers le Sud-Est de la zone polluée. Dans les deux cas une inversion de température à 1200 mètres limite le panache en altitude.

La figure 16 présente les résultats d'une étude effectuée le 09/09/72 à 10 km du centre de la ville. Concentrations en petits ions et en noyaux sont mesurées simultanément.

La teneur en noyaux déduite de celle des petits ions est obtenue par l'intermédiaire de l'équation (6). La constante de proportionnalité est déterminée pour chaque palier de prélèvement à partir des valeurs de petits ions et de noyaux mesurées simultanément à l'extérieur du panache.

Comme il a déjà été mentionné, la constante de temps du dispositif expérimental de mesure des petits ions (de l'ordre de la seconde), permet un tracé continu des répartitions de concentrations en noyaux à l'intérieur de la zone polluée. On note un assez bon accord avec les teneurs obtenues à l'aide du compteur de particules qui correspondent à des valeurs intégrées sur une distance de 2,500 km. La constante de proportionnalité entre concentrations en petits ions et en noyaux reste donc sensiblement la même à l'extérieur et à l'intérieur du panache. Ceci implique d'une part une granulométrie moyenne des particules et une intensité d'ionisation de l'air peu variables et d'autre part des concentrations en petits ions très proches des valeurs d'équilibre, ce qui est vraisemblable puisque le temps de vie de ces particules est de l'ordre de 60 s pour une teneur en noyaux de rayon moyen 3.10^{-6} cm de 20000 cm^{-3} .

De telles mesures, au nombre de 6, ont été effectuées à 10 et à 30 km de la ville. Pour chacun des cas j'ai porté sur le tableau 7, la valeur du flux et la précision correspondante.

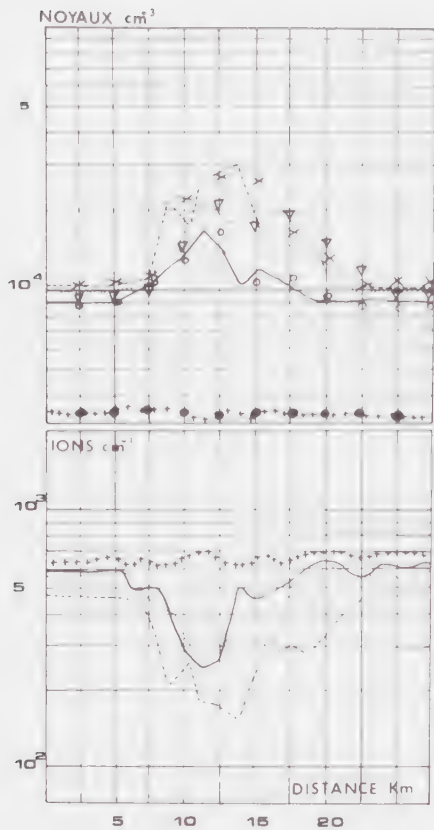
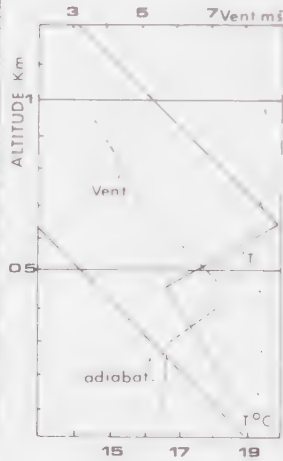


FIGURE 16 : Expérience du 09/09/72 dans le panache de l'agglomération de Pau. Les mesures sont faites au centre de la ville.

- Palier de mesure de la concentration en petites ions et valeurs calculées de la concentration en noyaux

(---) : 150 m
(....) : 240 m
(—) : 350 m
(++) : 480 m



- Mesure directe de la concentration en noyaux:

(X) : 150 m

(O) : 240 m

(●) : 480 m

La valeur moyenne du flux, mesurée à proximité de l'agglomération (distance inférieure à 30 km) est de l'ordre de $5 \cdot 10^{17}$ particules s^{-1} . La valeur minima ($2,5 \cdot 10^{17}$ particules s^{-1}) est accompagnée d'une grande imprécision. En effet, les concentrations moyennes à l'intérieur et à l'extérieur de la zone polluée respectivement 13 000 et 10 000 noyaux cm^{-3} sont telles que l'inégalité (10) n'est pas vérifiée. Cela conduit à une mauvaise définition des limites géométriques du panache pouvant introduire, comme il a déjà été mentionné une erreur supérieure à celle donnée par l'équation (9). Ces limites géométriques incluent, dans le cas considéré, la largeur de la zone polluée et sa hauteur (on n'observe pas d'inversion de température en altitude).

L'erreur relative sur la détermination du flux dans nos conditions expérimentales à l'exception du cas mentionné ci-dessus, est comprise entre 35 et 50 %. La part inhérente à l'avion, étant comme je l'ai déjà signalée de 25%, celle due à la mesure de la teneur en noyaux varie entre 10 et 25 %. Elle est d'autant plus importante que la valeur du flux est faible et que la dilution de la zone polluée est grande.

1.3 - Flux de particules issues du complexe industriel de Lacq

Situé à proximité de l'agglomération de Pau, le complexe de Lacq est une industrie d'exploitation et de traitement du gaz naturel.

Deux exemples caractéristiques des mesures effectuées à 5 km du centre sont donnés figures 17 et 18.

Date et heure (T.L.)	Distance à la ville (km)	Largeur (1) zone polluée (km)	Vitesse moyenne du vent (m.s ⁻¹)	Flux de particules (particules s ⁻¹)	Observations
26/11/71 11 h	10	20	3	$7,0 \cdot 10^{17} \pm 2,4 \cdot 10^{17}$	Mesure effectuée un vendredi Panache limitée en altitude par une inversion de température située à 1200 mètres
25/04/72 10 h	10	20	13	$5,8 \cdot 10^{17} \pm 2,9 \cdot 10^{17}$	Mesure effectuée un mardi Panache limitée en altitude par une inversion de tempéra- ture située à 900 mètres
25/04/72 11h	30	22	13	$5,4 \cdot 10^{17} \pm 2,7 \cdot 10^{17}$	Conditions identiques à la mesure précédente
26/04/72 11 h	30	25	3	$2,5 \cdot 10^{17} \pm 1,6 \cdot 10^{17}$	Mesure effectuée un mercredi Pas d'inversion de tempéra- ture en altitude - Panache décelé jusqu'à une hauteur de 800 mètres
08/09/72 14 h	10	18	3	$6,2 \cdot 10^{17} \pm 2,5 \cdot 10^{17}$	Mesure effectuée un vendredi Panache limitée en altitude par une inversion de tempéra- ture située à 1200 mètres
14/09/72 14 h	10	16	6	$3,5 \cdot 10^{17} \pm 1,4 \cdot 10^{17}$	Mesure effectuée un samedi Panache limitée en altitude par une inversion de tempéra- ture située à 450 mètres

(1) La largeur de la zone polluée correspond à la distance sur laquelle le panache est détecté.

TABLEAU 7 : Flux de noyaux d'Aitken émis par
l'agglomération de Toulouse.

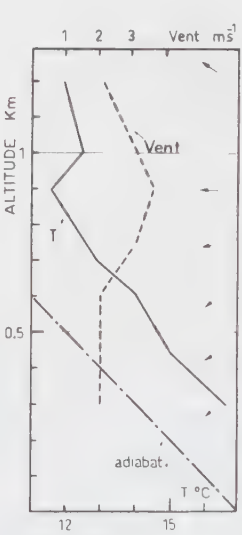
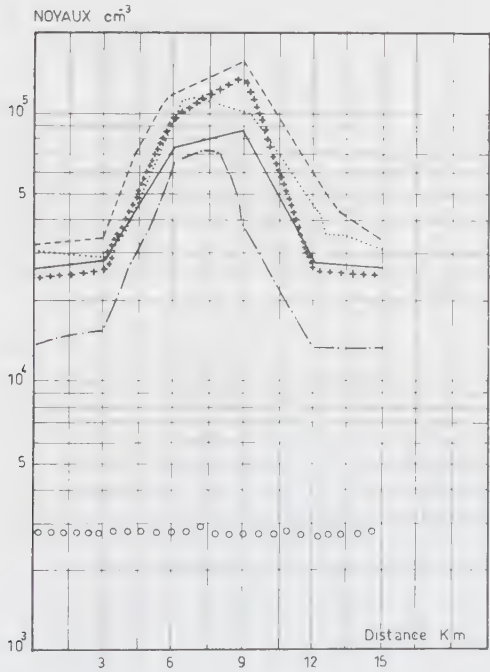
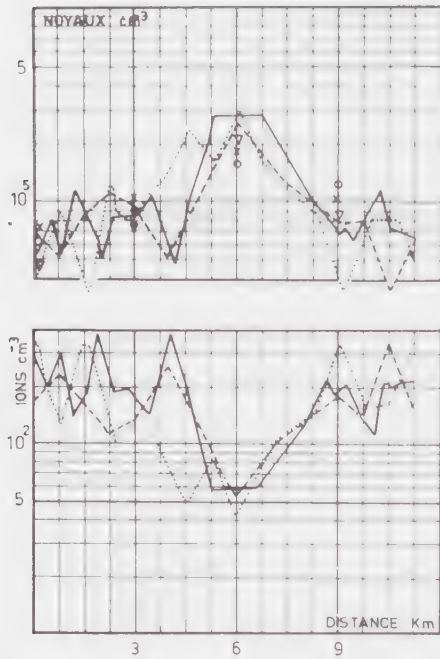
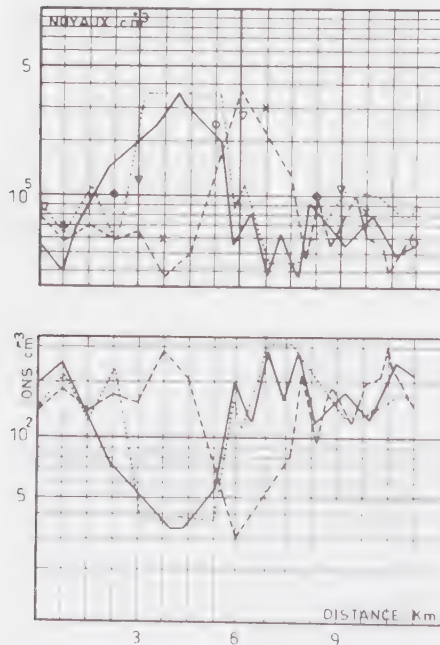


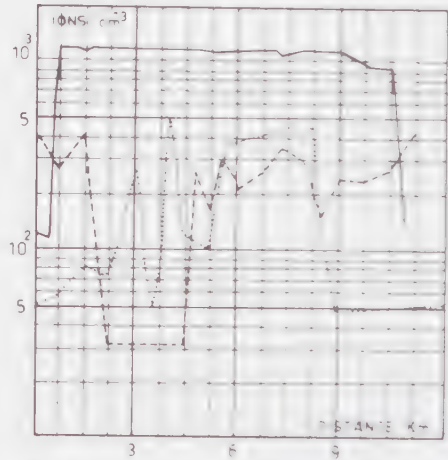
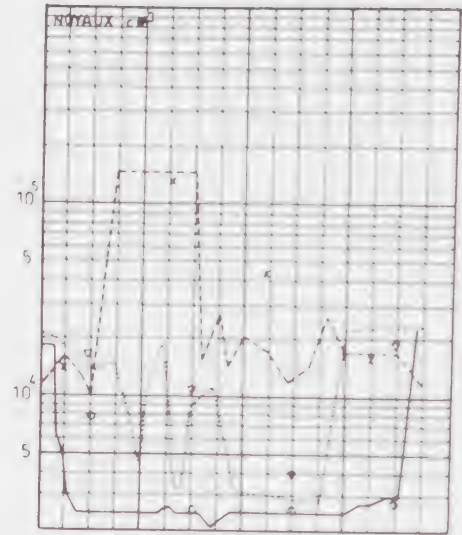
FIGURE 17 :
Expérience du 21 10
72, dans le panache
du complexe industriel
de Lacq à 5 km du
centre d'émission.
Palier de mesure à :
(---) : 300 m
(. . . .) : 450 m
(—) : 600 m
(+ + + +) : 750 m
(— — —) : 900 m
(o o o o) : 1200 m.



18.1 : Palier de mesure de la concentration en petits ions et valeurs calculées de la concentration en noyaux : (---) : 150 m ; (...) : 225 m ; (—) : 300 m. - Mesure directe de la concentration en noyaux : (X) : 150 m ; (V) : 225 m ; (O) : 300 m.



18.2 : Palier de mesure de la concentration en petits ions et valeurs calculées de la concentration en noyaux : (---) : 450 m ; (...) : 600 m ; (—) : 750 m. - Mesure directe de la concentration en noyaux : (X) : 450 m ; (V) : 600 m ; (O) : 750 m.



18.1 : Palier de mesure de la concentration en petits ions et valeurs calculées de la concentration en noyaux : (---) : 150 m ; (...) : 225 m ; (—) : 300 m. - Mesure directe de la concentration en noyaux : (X) : 150 m ; (V) : 225 m ; (O) : 300 m.

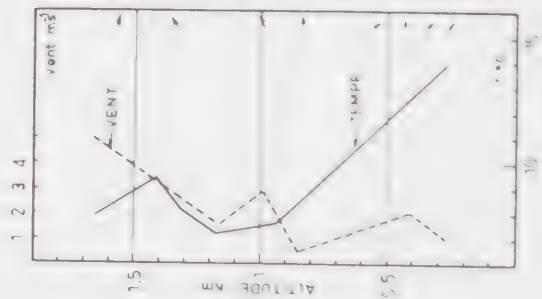


FIGURE 18 : Expérience du 13/09/72 dans le panache du complexe industriel de : 5 kilomètres du centre d' :

Dans le cas de la figure 18, les concentrations en petits ions et en noyaux sont mesurées simultanément. Comme il a déjà été mentionné pour les mesures effectuées à proximité de l'agglomération de Toulouse, la teneur en noyaux déduite de celle des petits ions présente par rapport à la mesure directe une meilleure résolution. Les différences entre les constantes de temps inhérentes aux deux méthodes (1 s. pour les petits ions ; 1 min. pour les noyaux) introduisent des écarts entre les concentrations plus marqués que dans l'étude précédemment citée. On remarquera dans ce cas que la largeur de la zone polluée est plus faible (6 km) et que les concentrations dans le panache sont très variables. Les flux de particules déterminés à 4 kilomètres du complexe à partir des 2 méthodes de détection sont respectivement $7,0.10^{17} \pm 1,9.10^{17}$ (méthode indirecte) et $6,1.10^{17} \pm 1,6.10^{17}$ (méthode directe) particules s^{-1} . On constate que les différences observées entre ces deux valeurs sont inférieures aux marges d'erreur.

L'utilisation des petits ions permet une étude avec une meilleure résolution spatiale des répartitions de concentrations.

Pour chacune des mesures, j'ai porté sur le tableau 8 les valeurs du flux.

Les flux déterminés à proximité du complexe (distance inférieure à 15 km) sont proches de 1.10^{18} particules s^{-1} . Ils sont déterminés avec une précision comprise entre 27 et 34 %. On constate dans ce cas, les concentrations étant en général supérieures à 1.10^5 particules cm^{-3} , que la principale source d'erreur provient de la mesure des paramètres de temps et d'espace donnés par l'avion.

Date et heure (T.L.)	Distance au complexe (km)	Largeur de la zone polluée (km)	Vitesse du vent (m.s ⁻¹)	Flux de particules (particules s ⁻¹)	Observations
21/06/72 10 h	4	9	2	$8,5.10^{17} \pm 2,6.10^{17}$	Panache limité en altitude par une inversion de température située à 900 mètres
21/06/72 11 h	15	20	2	$2,0.10^{18} \pm 6,8.10^{17}$	Conditions identiques aux précédentes
13/09/72 15 h	4	6	1	$7,0.10^{17} \pm 1,9.10^{17}$	Panache limité en altitude par une inversion de température située à 1200 mètres.

TABLEAU 8 : Flux de noyaux d'Aitken émis par le complexe industriel de Lacq.

I.4 - Détermination du taux de formation de noyaux dans le panache d'une source

J'ai déterminé dans le paragraphe précédent l'intensité de la source de noyaux par le flux de particules mesuré à une certaine distance de la zone génératrice. Or, la quantité totale de noyaux (C) contenue dans une section droite du panache d'épaisseur ΔP varie en fonction de la distance à la source par suite des phénomènes de formation (réaction chimique et photolytique) et de disparition liée à la coagulation. On détermine dans ce paragraphe le taux de formation de noyaux dans le panache de la source en étudiant l'évolution du flux de particules en fonction de la distance à la source.

On écrira pour tenir compte des phénomènes de formation et de disparition l'équation .

$$\frac{dC}{dx} = \frac{1}{V} (\tau - \text{pertes}) \quad (11)$$

Je poserai en supposant constante la concentration de particules dans l'épaisseur de panache Δp : $C = C_T \cdot \Delta p$ (C_T : quantité totale de noyaux, dus à la source de pollution, dans une épaisseur de panache de 1 cm). Elle s'exprime à la distance x_1 de la source sous la forme .

$$C_{x_1} = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} C_{x_1}(y,z) - C_{x_1,0}(z) \, dy \, dz$$

C_{x_1} et $C_{x_1,0}$: respectivement les concentrations volumiques à l'intérieur et à l'extérieur de la zone polluée

V : vitesse du vent

τ : quantité totale de noyaux formés par seconde dans l'épaisseur de panache Δp .

Il est vraisemblable que les noyaux se forment dans le panache par suite de réactions de transformation sur les constituants gazeux émis par la source, leur taux de formation doit donc évoluer avec le temps de vie de ces gaz dans l'atmosphère polluée que l'on admettra supérieur à quelques heures.

J'ai étudié l'évolution de la zone polluée pour l'agglomération de Toulouse et le complexe industriel de Lacq à des distances inférieures à 30 km de la source et sur des intervalles de temps inférieurs à 2 heures (distance entre 2 sections droites de mesure inférieure à 20 km). Je considérerai dans ces conditions que le taux de formation (τ) reste constant en fonction de la distance à la source dans le volume de zone polluée délimité par les 2 sections droites de mesure.

Par ailleurs, la quantité totale de noyaux formés par seconde dans une épaisseur de panache Δp est une caractéristique de la source de pollution qui varie d'une expérience à une autre avec la vitesse du vent (V). Pour s'affranchir de cette variation je considère une épaisseur de panache Δp telle que : $\Delta p/V = 1$.

A. EVALUATION DES PERTES

Les pertes par coagulation font intervenir les concentrations volumiques de noyaux dans le panache et leur distribution granulométrique. Dans l'hypothèse où les particules ont une dimension supérieure à 10^{-6} cm, on peut admettre en première approximation, comme il sera précisé dans le chapitre IV (§ IV), que le taux de disparition par seconde dans une section droite de la zone polluée d'épaisseur Δp s'écrit sous la forme (ZEBEL, 1966) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} k C^2(x,y,z) \cdot \Delta p \cdot dy \, dz$$

k : constante de coagulation moyenne correspondant au rayon moyen des particules. Les mesures simultanées des concentrations en petits ions et en noyaux effectuées dans les panaches de l'agglomération de Toulouse et du complexe industriel de Lacq, ont montré que la dimension moyenne des particules était sensiblement la même à l'extérieur et à l'intérieur de la zone polluée. La taille moyenne des particules mesurée à l'extérieur de la zone polluée est $3 \cdot 10^{-6}$ cm (Chapitre IV, V), elle conduit à une constante de coagulation de $10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$.

Cette expression du taux de disparition suppose que la dispersion du spectre granulométrique est faible et que la dimension des particules est grande (rayon supérieur à 10^{-6} cm). HUSAR (1972) donne, lors de mesures effectuées en zone polluée à Los Angeles, une valeur cinq fois plus grande du coefficient de coagulation résultant de la polydispersion du mélange d'aérosol et de la présence de petites particules vraisemblablement liée à l'existence de réactions photochimiques. Cette valeur pourra être précisée dans notre cas en mesurant le spectre granulométrique des particules.

Il faut par conséquent remarquer que l'hypothèse qui a été formulée pourrait entraîner une sous-estimation du taux de disparition ; cette sous-estimation étant fonction de la taille des particules qui sont générées et de leur processus de grossissement. Nous reviendrons sur cette discussion lors des mesures effectuées en zone non polluée qui sont présentées dans le chapitre IV.

Comme il a déjà été mentionné les limites d'intégration sont respectivement dans la direction y et z la largeur et la hauteur du panache. Ces limites varient en fonction de la distance à la source par suite des phénomènes de diffusion. En toute rigueur, l'estimation des pertes par coagulation sera obtenue par la résolution d'une équation de diffusion dans laquelle on introduit le terme de coagulation. Ceci n'est pas l'objet de mon étude.

Je suppose, en première approximation, que la disparition des noyaux à l'intérieur de la zone polluée est proportionnelle au carré de la concentration moyenne dans le volume délimité par les 2 sections droites du panache aux distances x_1 et x_2 du point d'émission. J'assimile ce volume à un cylindre de section droite $\bar{S}$ et je suppose de plus que l'évolution du panache entre x_1 et x_2 s'effectue suivant une loi de variation linéaire. Dans ces conditions j'exprimerai la disparition par l'expression

$$k \cdot \bar{C}^2 \bar{S} \Delta p$$

$\bar{C}$: concentration volumique moyenne dans le panache égale à : $\frac{\overline{C_{Mx_1}} + \overline{C_{Mx_2}}}{2}$

$\overline{C_{Mx_1}}, \overline{C_{Mx_2}}$: concentration volumique moyenne dans les sections droites de mesure aux distances x_1 et x_2 de la source

$\bar{S}$: surface moyenne des sections droites du panache égale à $(S_{x_1} + S_{x_2})/2$

S_{x_1}, S_{x_2} : surface de la zone polluée aux distances x_1 et x_2 de la source.

B. ESTIMATION DU TAUX DE FORMATION DANS LE PANACHE

En explicitant les différents termes l'équation (11) devient :

$$\Delta p \frac{dC_T}{dx} = \frac{1}{V} (\tau - k \bar{C}^2 \bar{S} \Delta p)$$

Son intégration entre x_1 et x_2 donne :

$$\left(\tau \right)_{x_1}^{x_2} = \left(\frac{V(C_{Tx_2} - C_{Tx_1}) + k \bar{C}^2 \bar{S} (x_2 - x_1)}{x_2 - x_1} \right) \Delta p$$

soit :

$$\left(\tau \right)_{x_1}^{x_2} = \left(\frac{(x_2 - x_1) + k \bar{C}^2 \bar{S} (x_2 - x_1)}{x_2 - x_1} \right) \Delta p \quad (12)$$

ϕ_{x_2} et ϕ_{x_1} : flux de particules à travers les sections droites du panache aux distances x_2 et x_1 du point d'émission.

La précision sur le taux de formation de noyaux à l'intérieur du panache est étroitement liée à celle des flux de particules déterminés aux différentes distances de la source.

L'estimation de cette erreur obtenue à l'aide d'un calcul classique est donnée par l'expression :

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = \frac{\Delta \phi_{x_1} + \Delta \phi_{x_2} + (\overline{C})(k\overline{C}^2)(x_2 - x_1) + (x_2 - x_1) \overline{S} k \overline{C}^2}{\phi_{x_1} + \phi_{x_2} + (\overline{C})(k\overline{C}^2)(x_2 - x_1) + (x_2 - x_1) \overline{S} k \overline{C}^2} + \frac{(\overline{C}_{x_2} - \overline{C}_{x_1})}{\overline{C}}$$

$$\Delta \tau = \frac{\Delta \phi_{x_1} + \Delta \phi_{x_2} + (\overline{C})(k\overline{C}^2)(x_2 - x_1) + (x_2 - x_1) \overline{S} k \overline{C}^2}{\phi_{x_1} + \phi_{x_2} + (\overline{C})(k\overline{C}^2)(x_2 - x_1) + (x_2 - x_1) \overline{S} k \overline{C}^2} + \frac{(\overline{C}_{x_2} - \overline{C}_{x_1})}{\overline{C}}$$

On estime l'erreur relative sur la distance séparant les 2 sections droites de mesure à 10 %. Celle sur Δp est la même que celle obtenue sur la mesure de l'intensité du vent (de l'ordre de 15 %).

C. RESULTATS EXPERIMENTAUX DANS LE CAS DE L'AGGLOMERATION DE TOULOUSE ET DU COMPLEXE DE LACQ

C.a - Agglomération de Toulouse

A 10 et 30 km de l'agglomération, les 2 profils effectués le 25/04/72 à une heure d'intervalle donnent des flux respectivement égaux à $5,8 \cdot 10^{17} \pm 2,9 \cdot 10^{17}$ et à $5,4 \cdot 10^{17} \pm 2,7 \cdot 10^{17}$ particules s^{-1} . Ces valeurs sont du même ordre de grandeur, elles montrent que le taux de formation de noyaux dans le panache est faible. Les marges d'erreur (de l'ordre de 50%) ne permettent pas de lui attribuer une valeur significative.

C.b - Complexe industriel de Lacq

Lors des deux mesures effectuées le 21/06/72, on constate une augmentation du flux avec la distance à la source ($8,5 \cdot 10^{17} \pm 2,6 \cdot 10^{17}$ particules s^{-1} à 4 km, $2 \cdot 10^{18} \pm 6,8 \cdot 10^{17}$ particules s^{-1} à 15 km), ce qui met en évidence une formation de noyaux dans le panache. La vitesse du vent reste constante = $2 \pm 0,3 \text{ m.s}^{-1}$, la largeur de la zone polluée passe de 9 à 20 km tandis que la hauteur limitée par une inversion de température à 900 mètres ne varie pas. La concentration moyenne dans le volume délimité par les 2 sections droites de mesure est de $7,8 \cdot 10^4 \pm 1,2 \cdot 10^4$ particules cm^{-3} .

Ces valeurs conduisent à une intensité de la source de noyaux, dans une portion de panache d'épaisseur $\Delta p = 2$ mètres située à une distance comprise entre 4 et 15 km de la zone d'émission, de $3,8 \cdot 10^{14} \pm 2,8 \cdot 10^{14}$ particules s^{-1} dans le cadre des hypothèses utilisées précédemment pour l'évaluation du taux de disparition des particules.

II. DETERMINATION DU TAUX DE FORMATION DANS LE CAS D'UNE SOURCE PRESENTANT UNE GRANDE SUPERFICIE - APPLICATION A UNE SOURCE NATURELLE : LA FORET DES LANDES

II.1 - Principe de la méthode

Elle consiste à comparer les quantités totales de noyaux contenues dans une colonne d'atmosphère de 1 cm^2 de section, obtenues au moyen de répartitions verticales effectuées au-dessus de la source en différents points alignés dans la direction du vent.

En supposant que la concentration en noyaux est uniforme dans la couche de mélange, ce qui est vérifié en général durant la journée (chapitre III, §. III), l'équation d'évolution des noyaux s'écrit :

$$\frac{dC}{dx} = \frac{1}{V} \left(\frac{\tau}{h} - kC^2 \right) \quad (13)$$

C : concentration volumique dans la couche de mélange

τ : taux de formation dans cette couche

h : hauteur de la couche de mélange

k : constante de coagulation égale à $10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ pour des particules de rayon moyen = $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$

V : vitesse du vent.

Les remarques précédentes (§ I.4A) quant à l'utilisation de cette équation demeurent dans ce cas. Les hypothèses qui résultent de son application devront être vérifiées dans chacun des cas expérimentaux par la mesure précise du spectre granulométrique des particules.

Cette équation est résolue dans le chapitre IV (§.IV).

La précision de la méthode peut être estimée en première approximation en négligeant les phénomènes de coagulation par l'expression :

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = \frac{\Delta V}{V} + \frac{\Delta h}{h} + \frac{\Delta C_2}{C_2 - C_1} + \frac{\Delta C_1}{C_2 - C_1} + \frac{\Delta(\frac{\tau}{h})}{\frac{\tau}{h}}$$

Δx : distance entre 2 répartitions verticales.

En remplaçant les différents termes par leur valeur, cette expression devient :

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = 30 \% + \frac{\Delta C_2}{C_2 - C_1} + \frac{\Delta C_1}{C_2 - C_1} \quad (14)$$

C_1 et C_2 : concentrations volumiques dans la couche de mélange pour les deux profils considérés.

II.2 - Application à la forêt des Landes

La zone forestière des Landes borde la côte atlantique, elle s'étend sur une superficie de 7000 km^2 . Le couvert végétal est composé de résineux.

Je présente sur la figure 19, quatre profils verticaux de concentration en noyaux effectués entre Toulouse et la côte atlantique dans la direction du vent (Sud-

Est). Au niveau des Landes, profils 3 et 4, on note une augmentation de la hauteur de la couche de mélange qui est liée au profil thermique et un accroissement de la quantité totale de noyaux dans une colonne de 1 cm^2 de section (profil 3 : $9,2 \cdot 10^8$ particules ; profil 4 : $2,5 \cdot 10^9$ particules). En dehors de la zone forestière cette quantité est pratiquement constante (profil 1 : $8,1 \cdot 10^8$ particules ; profil 2 : $8,5 \cdot 10^8$ particules). Cet accroissement met en évidence une source de noyaux d'intensité plus forte au-dessus de la zone forestière.

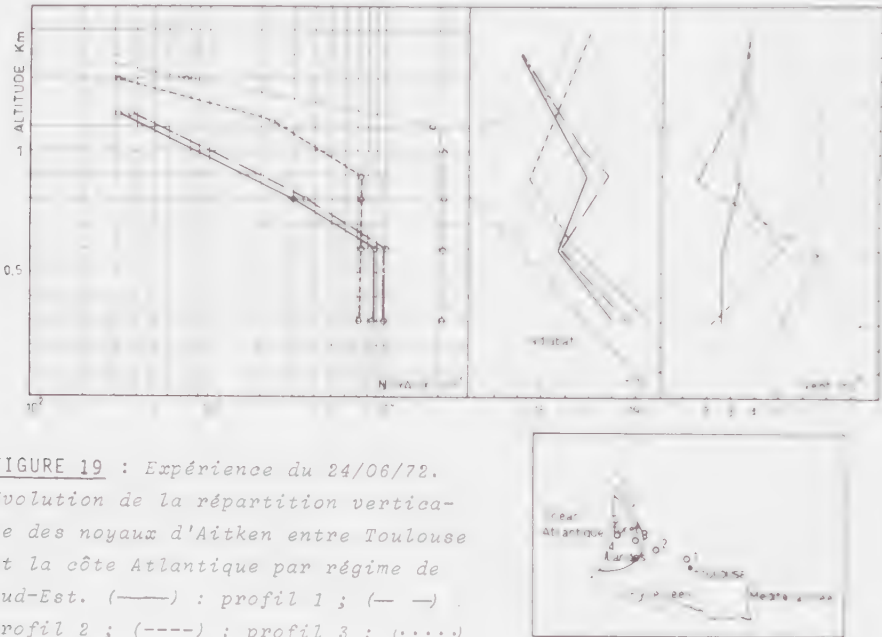


FIGURE 19 : Expérience du 24/06/72.
Evolution de la répartition verticale des noyaux d'Aitken entre Toulouse et la côte Atlantique par régime de Sud-Est. (—) : profil 1 ; (— →) : profil 2 ; (---) : profil 3 ; (.....) : profil 4.

Le temps de séjour de la masse d'air sur la forêt entre les profils 3 et 4 est de l'ordre de 4 h pour une vitesse moyenne du vent de 5 m s^{-1} . La concentration volumique de noyaux dans la couche de mélange croît durant ce temps de 8 000 à 20 000 particules cm^{-3} .

Dans ces conditions on obtient un taux de formation moyen dans la zone forestière de $1,2 \cdot 10^5 \pm 5,3 \cdot 10^4$ particules $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$.

Cette valeur est sensiblement 3 fois plus grande que le taux de formation moyen déterminé dans une zone rurale du Sud-Ouest de la France (chapitre II, §.III), elle est en bon accord avec celle déterminée lors d'une étude différente (10^5 particules $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) par la comparaison des répartitions verticales de noyaux d'Aitken et de traceurs radioactifs naturels, Plomb 212 et Radon 222 à différentes distances de la côte (chapitre III, §.IV). Ceci est un argument en faveur des hypothèses utilisées.

III. METHODE DE DETERMINATION DU TAUX DE FORMATION MOYEN DE NOYAUX DANS LE CAS D'UNE SOURCE UNIFORMEMENT REPARTIE SUR LE TRAJET D'UNE MASSE D'AIR

III.1 - Principe de la méthode

Elle consiste à comparer les quantités totales de noyaux contenues dans une colonne d'air de 1 cm^2 de section, mesurées à différents instants de la journée, dans une même zone de prélèvement et pour un régime de vent identique.

L'équation d'évolution des noyaux en fonction du temps s'écrit comme dans le cas précédent en supposant une répartition homogène dans la couche de mélange, sous la forme :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\tau}{h} - kC^2 \quad (15)$$

Les différents termes de cette expression ont été explicités (§.II). Sa résolution est donnée dans le chapitre IV, (§.IV). La précision sur τ peut être estimée en première approximation, en négligeant les phénomènes de coagulation, par l'expression :

$$\frac{\Delta \tau}{h} = \frac{\Delta h}{h} + \frac{\Delta C(t_1)}{C(t_2) - C(t_1)} + \frac{\Delta C(t_2)}{C(t_2) - C(t_1)} \quad (16)$$

$C(t_1)$ et $C(t_2)$: respectivement les concentrations volumiques dans la couche de mélange mesurées aux instants t_1 et t_2 .

III.2 - Application à la détermination du taux de formation moyen de noyaux dans la couche de mélange en zone non polluée

Je montrerai dans le chapitre III qu'en dehors des zones de pollution importantes, la source de noyaux d'Aitken, dans la couche de mélange, peut être considérée comme relativement bien répartie sur le trajet d'une masse d'air.

Le taux de formation moyen de noyaux dans cette couche peut être déterminé suivant la méthode présentée dans ce paragraphe à partir de profils verticaux échelonnés dans le temps.

L'utilisation de l'équation (15) dans ce cas précis sera discutée dans le chapitre IV (§ IV) à partir des seules mesures de concentration et de dimension moyenne qui ont été effectuées dans le cadre de cette étude.

Les différents profils verticaux de la concentration en noyaux ont été effectués en zone rurale dans la région toulousaine par période anti-cyclonique et en l'absence de brouillard. Les caractéristiques du site sont décrites dans les chapitres III (§.II) et IV (§.II).

A. EVALUATION DU TAUX DE FORMATION MOYEN AU COURS DE LA JOURNÉE

A.a - Cas où un seul profil a été effectué en fin de journée

Je n'ai effectué, dans certains cas, qu'un seul profil en fin de journée (entre 16 et 17 h). Je supposerai, dans ces expériences, que la concentration de noyaux mesurée est une valeur d'équilibre, c'est-à-dire $dC/dt = 0$.

Le taux de formation s'exprime dans ces conditions par :

tau = k h C_E^2

C_E : concentration volumique dans la couche de mélange à l'équilibre.

On peut estimer dans les basses couches de l'atmosphère où la pseudo-période des noyaux est comprise entre 10 h et 20 h (chapitre III, §.III) et où l'intensité de la source varie suivant un cycle diurne (chapitre IV, §.IV), que l'erreur introduite par cette hypothèse est inférieure à un facteur 2. Les valeurs ainsi obtenues sont portées sur le tableau 9. L'intensité moyenne de la source diurne est comprise entre 1,9.10^4 et 3,8.10^4 particules cm^-2s^-1 (valeurs qui seront confirmées à partir de mesures effectuées au niveau du sol en zone rurale (chapitre IV, §.IV).

Journee	h(m)	(p.cm^-2 s^-1)	/h(p.cm^-3 s^-1)
17/09/71	200	1.9 . 10^4 - 3.8 . 10^4	0.2 - 0.4
29/09/71	300	2.8 . 10^4 - 5.6 . 10^4	0.4 - 0.7
17/03/72	1000	3.3 . 10^4 - 6.6 . 10^4	0.3 - 0.6
19/05/72	1200	4.2 . 10^4 - 8.4 . 10^4	0.3 - 0.6
29/05.72	1000	1.7 . 10^4 - 3.4 . 10^4	0.2 - 0.3
31/05/72	1000	1.6 . 10^4 - 3.2 . 10^4	0.1 - 0.3
08/09/72	1100	8.8 . 10^3 - 1.7 . 10^4	0.1 - 0.2
09/09/72	1400	1.4 . 10^4 - 2.8 . 10^4	0.1 - 0.2
10/09/72	1700	8.3 . 10^3 - 1.6 . 10^4	0.05 - 0.1
11/09/72	1000	9.1 . 10^3 - 1.8 . 10^4	0.05 - 0.1
12/09/72	1300	2.8 . 10^4 - 5.6 . 10^4	0.2 - 0.4
13/09/72	1500	1.5 . 10^4 - 3 . 10^4	0.1 - 0.2
16/09/71	1400	1.1 . 10^4 - 2.3 . 10^4	0.1 - 0.2
15/10/71	200	1.7 . 10^4 - 3.4 . 10^4	0.2 - 0.4
27/09/71	1000	2.3 . 10^4 - 4.6 . 10^4	0.2 - 0.5
Valeurs moyennes	1200	1.9 . 10^4 - 3.8 . 10^4	0.1 - 0.3

TABLEAU 9 : Taux de formation moyen diurne de noyaux d'Aix-les-Bains dans la couche de mélange.

- h : hauteur de la couche de mélange
- tau : taux de formation dans une colonne 1 cm x 1 cm de section (particules cm^-2s^-1)
- tau/h : taux de formation volumique (particules cm^-3s^-1)

A.b - Variation du taux de formation moyen au cours d'une journée

Le taux de formation de noyaux pourra être déterminé à différents instants de la journée à partir de profils verticaux échelonnés dans le temps.

Dans ce cas, la concentration initiale nécessaire à la résolution de l'équation(15)est celle obtenue lors du vol précédent.

Je présente à titre d'exemple (figures 20 à 23) quelques-unes de ces répartitions verticales obtenues à différentes heures de la journée. Une analyse détaillée de ces profils sera donnée par la suite.

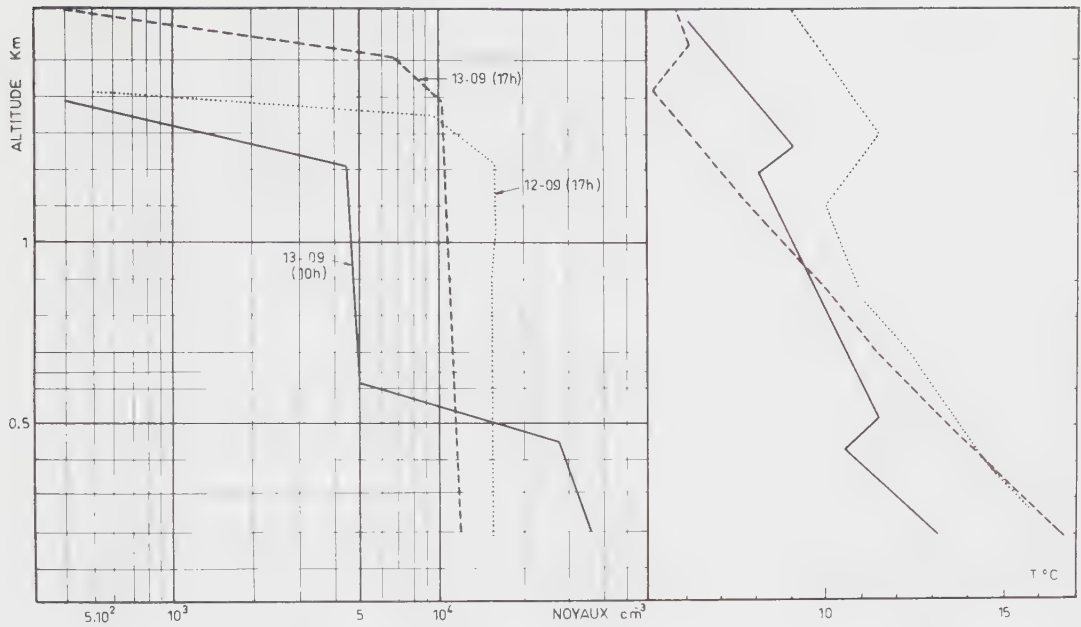


FIGURE 20 : Expérience du 12/09/72 et du 13/09/72. Profil vertical de noyaux d'Aitken: (....) : le 12/09/72 à 17 h ; (—) : le 13/09/72 à 10 h ; (---) : le 13/09/72 à 17 h.

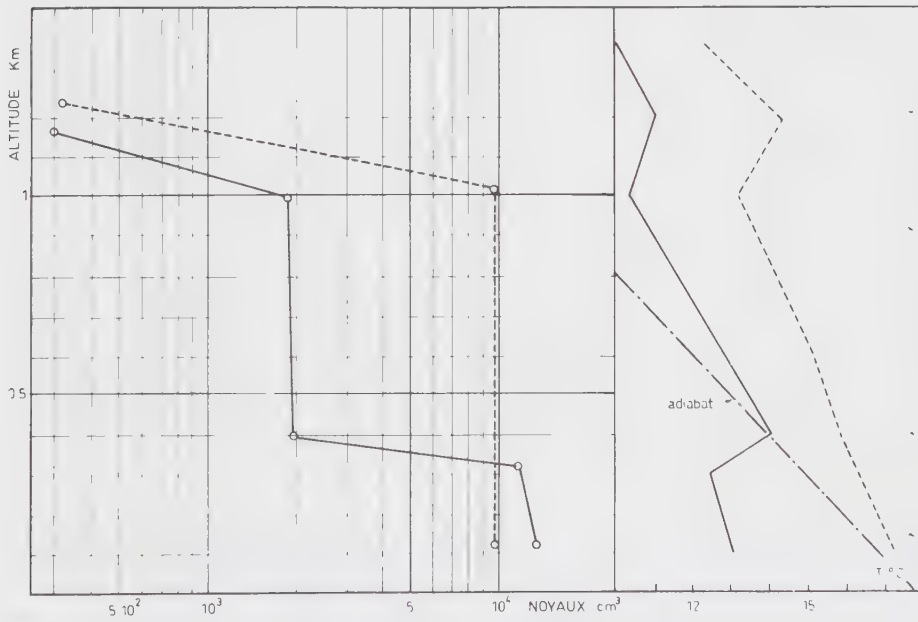


FIGURE 21 : Expérience du 27/09/71. Répartition verticale des noyaux d'Aitken au-dessus de la région de Toulouse : (—) : à 10 h ; (---) : à 17 h.

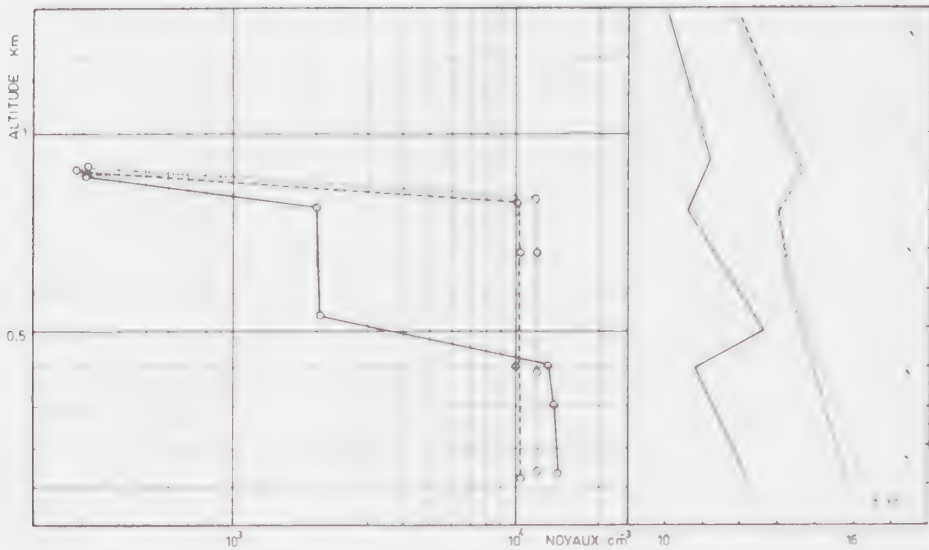


FIGURE 22 : Expérience du 17/11/71. Répartition verticale des noyaux d'Aitken au-dessus de la région de Toulouse : (—) : à 10 h ; (---) : à 15 h ; (....) : à 17 h.



FIGURE 23 : Expérience du 20/06/72 et du 21/06/72. Profil vertical de noyaux d'Aitken : (—) : 20/06/72 à 11 h ; (---) : 21/06/72 à 5 h.

Les résultats ainsi obtenus sont portés sur le tableau 10. On constate que le taux de formation reste sensiblement constant au cours de la journée et du même ordre de grandeur que la valeur moyenne journalière (tableau 9). Si l'on considère une formation uniforme dans la couche de mélange, l'intensité volumique de la source de noyaux varie au cours de la journée ; dans la couche d'inversion se situant près du sol le matin, elle est comprise entre 1 et 1,4 particules cm^3s^{-1} , valeur 5 à 10 fois plus élevée que la valeur moyenne journalière comprise entre 0,17 et 0,34 particule $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$).

B. INTERPRETATION DES PROFILS VERTICAUX OBTENUS A DIFFERENTES HEURES DE LA JOURNÉE

A 10 h du matin, (figures 20, 21, 22) on note de fortes concentrations en noyaux dans la couche d'inversion nocturne se situant près du sol (15 000 à 20 000 particules cm^{-3}), tandis qu'elles sont faibles au-dessus (2 000 à 5 000 particules cm^{-3}). Ces dernières valeurs sont sensiblement les mêmes que celles observées à 5 h du matin pour des journées différentes (figure 23). Le développement

Journée	neure	τ (μ cm ⁻² s ⁻¹)	τ/h (μ cm ⁻³ s ⁻¹)
15/10/71	Lever soleil-10h (1)	$2,6 \cdot 10^4 \pm 1,0 \cdot 10^4$	$1,2 \cdot 0,5$
	10h - 15h	$3 \cdot 10^4 \pm 1,6 \cdot 10^4$	$0,35 \cdot 0,2$
	15h - 17h	$3 \cdot 10^4 \pm 2 \cdot 10^4$	$0,35 \cdot 0,23$
27/09/71	Lever du soleil-10h	$2,5 \cdot 10^4 \pm 1,0 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 0,4$
	10 h - 16 h	$3,1 \cdot 10^4 \pm 1,2 \cdot 10^4$	$0,3 \cdot 0,1$
17/11/71	Lever du soleil-11h	$7,0 \cdot 10^4 \pm 2,2 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 0,4$
09/09/72	Lever du soleil-10h	$3,7 \cdot 10^4 \pm 1,5 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 0,6$
13/09/72	Lever du soleil-10h	$5,6 \cdot 10^4 \pm 1,9 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 0,5$

(1) Au lever du soleil, on prend comme valeur initiale celle de la concentration mesurée au-dessus de la couche.

τ/h représente le taux de formation volumique dans la couche de mélange de hauteur h en supposant que l'intensité de la source y est uniforme.

TABLEAU 10 : Variation du taux de formation de noyaux d'Aitken au cours de la journée dans la couche limite planétaire au-dessus de la région de Toulouse.

de cette situation est illustré par la figure 20. Le 12/09/72 à 17 h, on note une concentration homogène dans la couche de mélange (0-1300 mètres), un fort gradient à 1300 mètres est dû à la présence d'une inversion de température freinant les échanges entre cette couche et l'atmosphère libre.

Durant la nuit, cette inversion de température se maintient, tandis qu'une couche stable qui se développe près du sol sur une hauteur de 400 mètres limite les échanges de matière provenant du sol.

Dans la couche 400-1300 mètres, la décroissance nocturne des concentrations est donc due principalement, en l'absence d'échange entre les couches supérieure et inférieure, aux phénomènes de coagulation (l'analyse météorologique montre qu'il n'y a pas eu de lessivage durant la nuit).

En considérant une pseudo-période de disparition nocturne des noyaux dans cette couche, de l'ordre de 10 h (chapitre III, §.III), les concentrations observées le 13/09/72 à 10 h laissent apparaître que le taux de formation dans cette couche, durant la nuit ainsi qu'après l'apparition du soleil jusqu'à 10h est resté faible.

Au cours de la journée, l'inversion de température près du sol disparaît. On observe une augmentation de la quantité totale de noyaux dans la couche limite planétaire accompagnée d'une homogénéisation des concentrations.

Ces différentes observations suggèrent deux hypothèses complémentaires sur la formation diurne des noyaux dans la couche limite planétaire.

- Dans la couche d'inversion nocturne il y aurait soit une formation directe de noyaux, soit des réactions de transformation liées à l'ensoleillement sur des gaz émis par le sol ou la végétation. Cette dernière hypothèse paraît plus vraisemblable compte tenu des résultats obtenus au niveau du sol (chapitre IV). Elle impliquerait un dégagement continu en fonction du temps d'un ou de plusieurs constituants participant à ces réactions de transformation.

- Au-dessus de la couche d'inversion nocturne une formation de noyaux faible. Cela signifie que le temps de vie d'un ou de plusieurs constituants participant aux transformations gaz-solide et gaz-liquide, qui sont les seules causes de formation de noyaux en altitude est inférieur à 12 h.

Ces résultats sont confirmés dans le chapitre III, où on montre que le taux de production au-dessus de la couche d'inversion de température (près du sol la nuit, ou à la limite supérieure de la couche de mélange le jour) est faible.

IV. CONCLUSION

J'ai développé à l'aide de mesures aériennes différentes méthodes de détermination de l'intensité des sources de noyaux d'Aitken dans l'atmosphère. Elles ont permis l'étude de quelques-unes des principales sources de noyaux du Sud-Ouest de la France.

Ces sources peuvent être classées en deux groupes : celles quasi-ponctuelles, ce sont en général les agglomérations et les complexes industriels, celles étendues qui regroupent en général les zones de campagne et de forêt.

Pour le premier groupe, la méthode utilisée consiste à déterminer à proximité de la source, le flux de particules à travers une section droite du paracône. Il est mesuré à partir de la répartition spatiale des concentrations en particules dans la zone polluée obtenue, soit :

- directement à l'aide d'un compteur de noyaux dont la constante de temps est de l'ordre de la minute ;

- indirectement à l'aide de précipitateurs électrostatiques donnant la teneur en petits ions et dont la constante de temps est de l'ordre de la seconde.

Dans le cas de nos mesures, ces deux modes de prélèvement ont donné pour chacune des sources étudiées (agglomération de Toulouse, complexe industriel de Lacq) des valeurs semblables. L'utilisation des petits ions permet d'obtenir une meilleure résolution spatiale de la répartition des concentrations à l'intérieur de la zone polluée. Elle doit permettre en outre d'étudier des sources de dimensions géométriques plus petites pour lesquelles la constante de temps du compteur de noyaux introduirait des erreurs importantes.

La précision correspondant à cette méthode varie avec la dilution, à titre d'exemple elle est comprise entre 35 et 50 % dans le cas d'une agglomération de 400 000 habitants et pour des mesures effectuées à des distances inférieures à 30 km de la source. Son utilisation sera donc limitée dans le cas d'agglomérations plus petites.

On utilise par ailleurs cette méthode pour déterminer le taux de formation de noyaux à l'intérieur d'une zone polluée. Ce taux de formation est une caractéristique de la source qui dépend des réactions de transformation gaz-solide sur les polluants gazeux émis par la zone considérée. On étudie pour cela la variation du flux de particules en fonction de la distance à la source moyennant certaines hypothèses sur l'évolution des noyaux dans la zone polluée. Des mesures précises du spectre granulométrique, qui n'ont pu être effectuées dans le cadre de cette étude, devraient permettre de vérifier ces hypothèses.

Dans le cas de la région étudiée, j'ai appliqué cette méthode à l'agglomération de Toulouse (400 000 habitants) et au complexe industriel de Lacq.

En ce qui concerne l'agglomération de Toulouse, le flux de particules est de l'ordre de 5.10^{17} particules s^{-1} , le taux de formation de noyaux dans la zone pol-

luée est faible. La précision sur nos mesures ne permet pas de lui attribuer une valeur significative.

A proximité du complexe industriel de Lacq, le flux de noyaux est de l'ordre de 10^{18} particules s^{-1} , le taux de formation de noyaux dans un volume de panache d'épaisseur $\Delta p = V(\text{vitesse du vent}) = 2$ mètres est de $3,8.10^{14} \pm 2,8.10^{14}$ particules s^{-1} .

Pour le second groupe de source, on étudie l'évolution de la répartition verticale des concentrations en fonction du temps ou de l'espace. La précision correspondante est fonction de l'intensité de la source.

Parmi les sources naturelles que j'ai étudiées au moyen de ces méthodes, la zone forestière des Landes, avec un couvert végétal composé essentiellement de résineux fournit du moins le jour et au printemps, trois fois plus de noyaux par unité de surface et de temps que la campagne (10^5 particules $cm^{-2}s^{-1}$ comparé à $0,3.10^5$ particules $cm^{-2}s^{-1}$)

-:- -:-

-:-

CHAPITRE III

COMPARAISON DES RÉPARTITIONS VERTICALES DE NOYAUX D'AITKEN RADON ET ^{212}Pb , APPLICATION À L'ÉTUDE DE L'ÉVOLUTION ET DES SOURCES DE NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHÈRE. (1)

Les répartitions verticales de noyaux d'Aitken dans l'atmosphère dépendent des caractéristiques de la source (intensité, localisation spatiale, homogénéité), de l'intensité des échanges verticaux et des caractéristiques d'évolution des noyaux: coagulation, lessivage.

Je montre dans ce chapitre, l'intérêt pour l'étude de ces différents paramètres, des mesures de répartitions verticales de noyaux d'Aitken en même temps que celles des conditions de diffusivité.

Un certain nombre d'expériences, effectuées au laboratoire (GUEDALIA, 1974) ont montré l'intérêt des traceurs radioactifs naturels, radon et ^{212}Pb , pour l'étude des échanges de matière dans la basse troposphère. Ces derniers permettent de mesurer l'intensité des échanges verticaux et de s'affranchir dans l'interprétation des profils verticaux de noyaux d'Aitken d'une analyse météorologique souvent délicate.

Je présente dans ce chapitre, les résultats que l'on peut déduire, en ce qui concerne les noyaux d'Aitken de la comparaison de ces différentes mesures.

I. GENERALITES SUR LE RADON ET LE ^{212}Pb

Le radon, gaz rare radioactif naturel ($T_{1/2} = 3,8$ jours) se dégage du sol. On peut considérer, en première approximation, pour un sol de même origine géologique, sa source uniforme (PEARSON, 1965). Il n'est pas soumis aux phénomènes de lessivage, sa disparition est essentiellement due à sa période radioactive.

Le ^{212}Pb ($T_{1/2} = 10,6$ heures) est un élément de la chaîne de désintégration du thoron. On peut, là encore, en première approximation, considérer la source de thoron, donc celle du ThB uniforme. Le dégagement de thoron du sol a été étudié par GUEDALIA (1970), DRUILHET (1972). Le ^{212}Pb est fixé sur l'aérosol atmosphérique, il pourra donc être lessivé au niveau des nuages.

II. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Les mesures sont effectuées à l'aide d'un avion CESSNA TU 206 équipé :

- pour la mesure des concentrations en noyaux, d'un compteur dont les caractéristiques ont déjà été données (chapitre I, §.I). Le point de prélèvement est situé sur le bord d'attaque de l'aile afin d'éviter toute contamination due au moteur de l'avion ;

(1) L'essentiel de ce chapitre a fait l'objet de 2 publications :

- *Journal Applied Meteorology* (D. GUEDALIA, A. LOPEZ, J. FONTAN, A. BIROT), 1975
- *Journal of Geophysical Research* (A. LOPEZ, D. GUEDALIA, J. SERVANT, J. FONTAN) 1976.

- pour la mesure des concentrations en ^{212}Pb et radon, d'un ensemble de prélèvement situé à bord de l'avion. Celui-ci, ainsi que l'ensemble de comptage situé au sol, ont été décrits (GUEDALIA, 1973) ;

- pour l'enregistrement en continu des paramètres météorologiques : température, humidité relative, point de rosée, pression, vitesse et direction du vent moyen.

La zone de prélèvement, située dans le Sud-Ouest de la France (région de Toulouse) est à une distance de 250 kilomètres de la côte Atlantique ou Méditerranéenne, et à 150 km au Nord des Pyrénées.

III. COMPARAISON ENTRE LES PROFILS DE REPARTITION VERTICALE DE NOYAUX D'AITKEN, ^{212}Pb ET RADON

Une vingtaine de vols ont été réalisés entre octobre 1971 et octobre 1972, en général par période de temps clair ou peu nuageux. Cela correspond, soit à des flux d'air d'W-N.W, soit des flux d'E-S.E..

On trouve dans toutes les expériences, à deux exceptions près dues à des pollutions locales, des variations similaires entre les profils de ^{212}Pb et de noyaux d'Aitken (figures 24 à 27).



FIGURE 24 : Profils verticaux des concentrations en noyaux d'Aitken (N_A), radon et ^{212}Pb mesurés le 11.08.72.

Dans certains cas, au nombre de 5, le profil de radon, différent de celui du ^{212}Pb , ne correspond pas aux conditions locales de diffusivité en raison de l'importance de l'advection horizontale (figures 26 et 27).

La comparaison des trois profils, en particulier lorsque celui du radon est différent de celui du ^{212}Pb , montre :

- que la répartition verticale des noyaux d'Aitken dans les basses couches de l'atmosphère (0-2000 mètres) est comparable à celle du ^{212}Pb , c'est-à-dire liée à

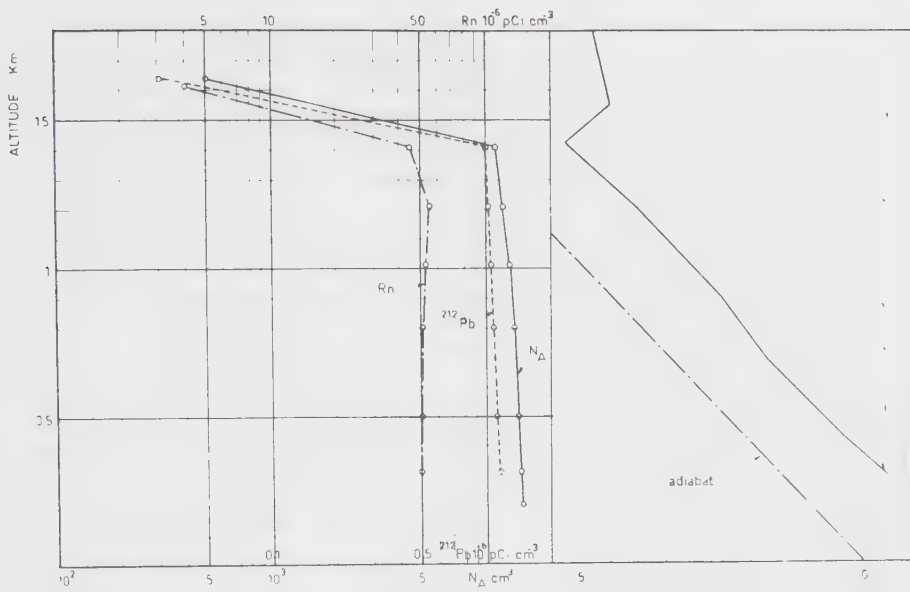
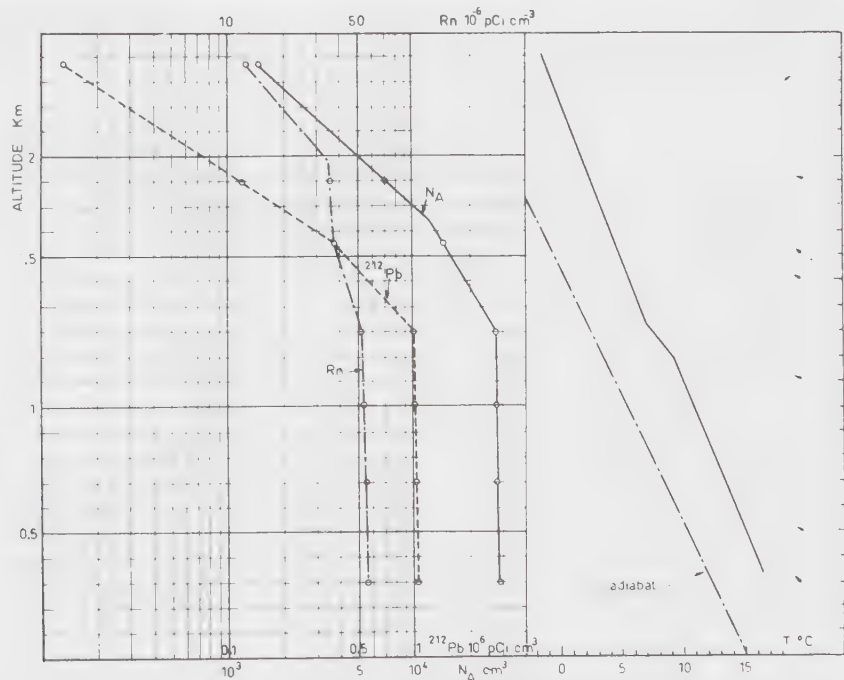


FIGURE 25 :
Profils ver-
ticaux des
concentrations
en noyaux
d'Aitken (N_A),
radon et ^{212}Pb ,
mesurés le
18/03/71.

FIGURE 26 :

Profils verticaux
des concentrations
en noyaux d'Aitken
(N_A), radon et
 ^{212}Pb mesurés le
18/03/72.



la stabilité verticale (GUEDALIA, 1974). Dans les couches de forte instabilité qui se développent en général sur plusieurs centaines de mètres au-dessus du sol, pendant la journée, on note un gradient de concentration extrêmement faible.

Dans la couche stable que l'on rencontre en général pendant la journée au-dessus de la couche de mélange, on constate une décroissance des concentrations. Les teneurs observées dans l'atmosphère libre sont en général inférieures à 300 particules cm^{-3} , elles sont de l'ordre de 10 000 noyaux cm^{-3} dans la couche de mélange.

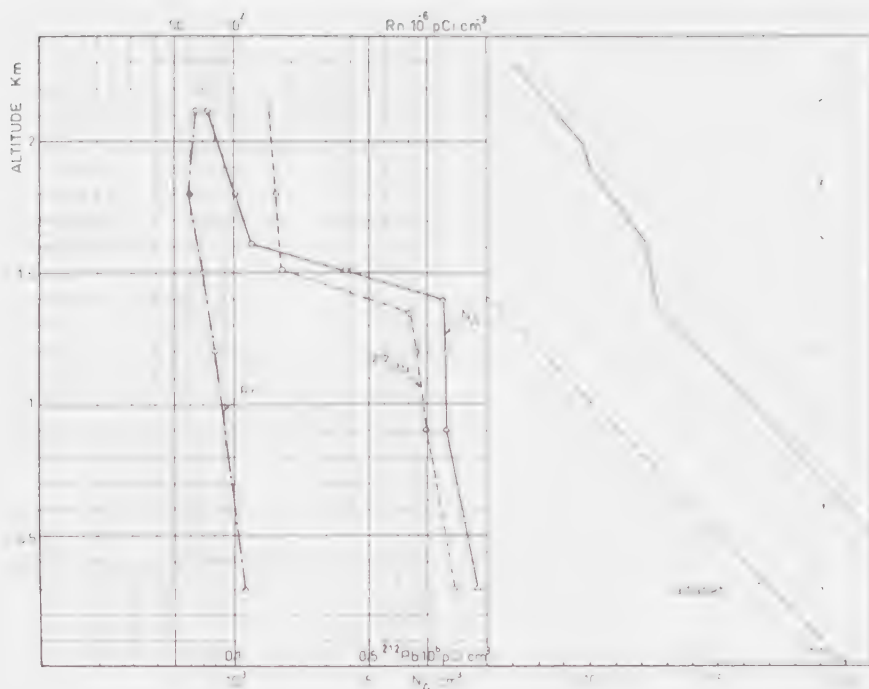


FIGURE 27

Ces répartitions sont identiques à celles des gros ions atmosphériques observées par SAGALYN (1954) au-dessus du New England aux Etats Unis. Elles diffèrent légèrement de celles obtenues par WEICKMANN (1955), IMYANITOV (1967) qui n'ont pas, en des sites plus continentaux, de brusque décrochement de concentration au niveau supérieur de la couche de mélange.

Je pense que les variations de concentration que l'on observe sont accentuées par la situation géographique de la France qui est souvent alimentée au-dessus de la couche limite planétaire par de l'air provenant directement de l'océan atlantique.

- Une "pseudo-période" apparente des noyaux dans l'atmosphère, pour les conditions correspondant aux expériences, inférieure à la période radioactive du ^{212}Pb (3,8 jours) et beaucoup plus proche de celle du ^{212}Pb (10,6 heures). Cette "pseudo-période" inclue l'ensemble des phénomènes de disparition, c'est-à-dire la coagulation et le lessivage par les nuages et les précipitations ; la coagulation étant prépondérante dans les basses couches. Ce résultat ne peut pas être considéré comme la valeur moyenne de la "pseudo-période" des noyaux dans l'atmosphère, étant donné le nombre limité d'expériences.

- Une source de noyaux, à l'échelle des mesures comme celle du ^{212}Pb relativement bien répartie sur le trajet de la masse d'air. En effet, des sources très intenses et très localisées (par exemple des pollutions industrielles ou urbaines), mais peu nombreuses, donneraient des profils de répartition différents de ceux du ^{212}Pb . Ce résultat est en accord avec celui que j'ai obtenu, en comparant sur un site non pollué les variations des concentrations en noyaux et en radon au niveau du sol (chapitre IV, §.III).

- Au-dessus de la couche de mélange, la faible concentration en noyaux, malgré la présence de radon (figures 26 et 27), peut être due à un lessivage de la masse d'air ; mais d'après l'analyse météorologique, il n'est pas récent. Le taux

de formation de noyaux est donc resté très faible. Si l'on considère que ces particules se forment à partir de réactions sur des constituants gazeux à l'état de trace (par exemple, le SO_2), il faut admettre que ces gaz disparaissent avec une pseudo-période très inférieure à celle du radon (3,8 jours) ou que les vitesses de ces réactions sont très lentes en l'absence d'un catalyseur en concentration suffisante.

IV. EVOLUTION COMPAREE DES PROFILS DE REPARTITION DES NOYAUX D'AITKEN, RADON ET ^{212}Pb

IV.1 - En fonction du temps

Sur la figure 28, je présente les répartitions verticales de noyaux, ^{212}Pb et radon, mesurées le 20/06/72 entre 16 h et 17 h 30 et celles du lendemain à 5 h 30. Le gradient thermique du 20/06 montre l'existence d'une couche instable jusqu'à 1200m avec une couche stable au-dessus. Cette couche stable persiste durant la nuit expliquant les forts gradients de ^{212}Pb et noyaux d'Aitken observés à ce niveau. Comme il a déjà été mentionné, l'existence de radon en altitude n'est pas liée aux conditions de diffusivité locale.

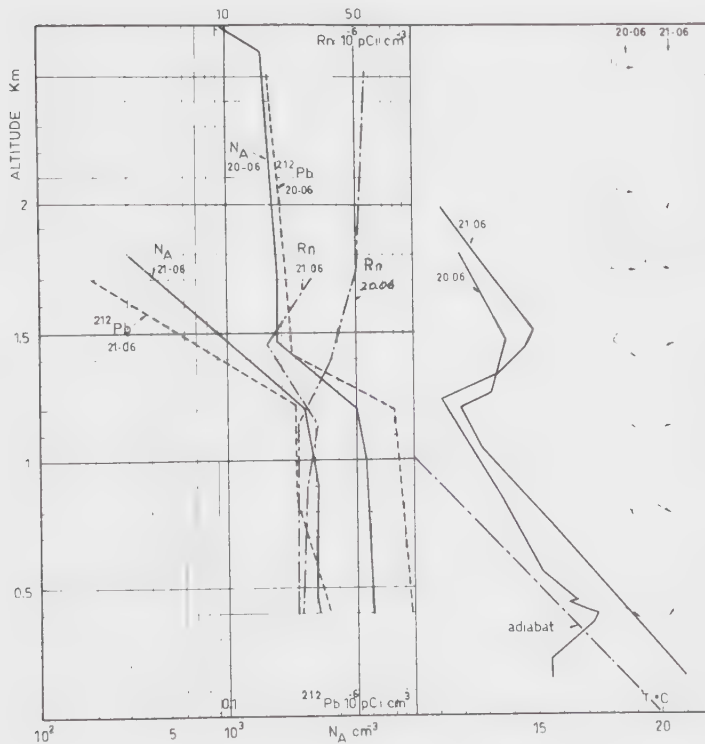


FIGURE 28 : Profils verticaux des concentrations en noyaux d'Aitken (N_A), radon et ^{212}Pb mesurés le 20/06/72 (17 h) et le 21/06/72 (5 h 30).

Le lendemain en raison du refroidissement nocturne du sol, une couche stable s'est développée au-dessus du sol sur une hauteur de 400m, freinant les échanges à ce niveau.

Les concentrations en ^{212}Pb et en noyaux d'Aitken sont divisées par 2 durant la nuit, dans la couche 400-1200 m ; pour le radon, on ne note pas de variation sensible.

Dans le cas du ^{212}Pb , cette diminution correspond à la désintégration radioactive, ce qui montre que le flux vertical qui traverse le niveau supérieur de la couche stable durant la nuit est faible (ALLET, 1973).

Dans le cas des noyaux, le rapport flux (nuit)/flux (jour) au niveau 400 mètres ne pourra être que plus petit que celui du ^{212}Pb , l'intensité de la source noc-

turne près du sol étant plus faible la nuit (chapitre IV, §.IV).

A 1200 mètres, le flux de noyaux qui passe dans l'atmosphère libre s'écrit sous la forme :

$$-K(\gamma) \frac{d\gamma}{dz}$$

$K(z)$: coefficient d'échange à 1200 m, déterminé à l'aide du ^{212}Pb de l'ordre de $1 \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$
 dC/dz : gradient de concentration à 1200 m.

On détermine expérimentalement à ce niveau, un flux nocturne de noyaux inférieur à $1000 \text{ particules cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, soit une quantité maximale de $4,3 \cdot 10^7$ noyaux qui passent dans l'atmosphère libre durant la nuit. Cette valeur correspond à $1/10^6$ de la quantité totale de noyaux contenus dans la couche 400-1200 m ($4,6 \cdot 10^8$ pour une colonne de 1 cm^2 de section). Dans ces conditions, la fuite avec l'atmosphère libre est négligeable. La diminution des concentrations en noyaux dans la couche 400-1200 m d'un facteur 2 durant la nuit, entraîne une pseudo-période de disparition des noyaux de l'ordre de 12 h. Cette disparition est due essentiellement aux phénomènes de coagulation ; le degré hygrométrique (70%) élimine la possibilité de formation de brumes ou de brouillards.

La variation du nombre de noyaux (n) par suite des phénomènes de coagulation peut se représenter par :

$$\frac{dn}{dt} = -Kn^2 \quad (17)$$

Nous avons précisé, dans le chapitre II (§), les hypothèses résultant de l'utilisation de cette équation, nous y reviendrons plus en détail dans le chapitre IV (§ IV.1A). Elle conduit à une constante de coagulation K de l'ordre de $2,5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, valeur légèrement supérieure à celle correspondant à des particules de rayon moyen $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ ($10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ FUCHS (1964), ZEBEL (1966)) et utilisé par JUNG (1961). En fait le phénomène de disparition est plus complexe que celui schématisé par l'équation (17), le spectre granulométrique étant polydispersé. De plus, le rayon moyen des particules augmente la nuit (chapitre IV, § V) et la polydispersion devrait diminuer pendant le même temps comme le suggère les modèles de WHITBY (1972).

IV.2 - Dans une masse d'air

On a mesuré par régime d'Ouest, 3 profils de concentration de radon, 3 profils de noyaux d'Aitken à des distances de 5, 100, 200 km de la côte Atlantique (figure 29).

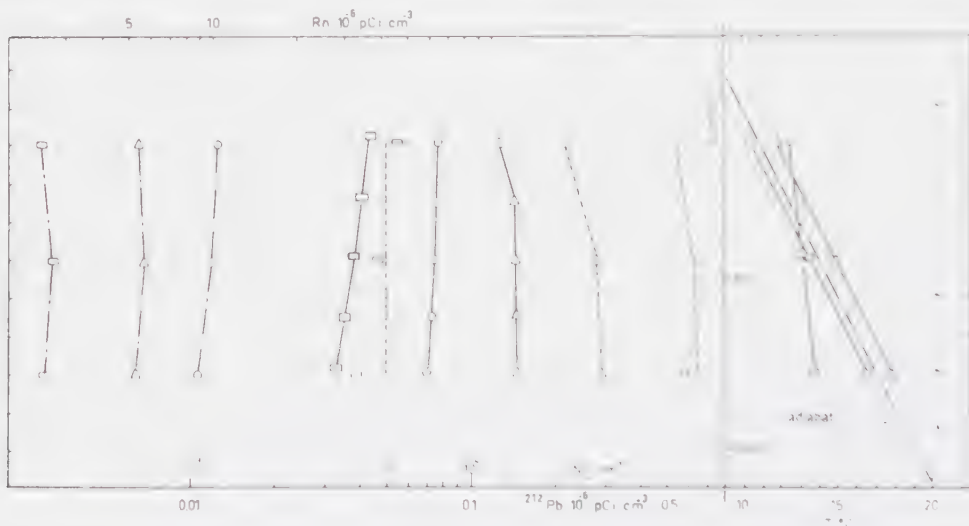


FIGURE 29 : Profils verticaux des concentrations : (—) : en noyaux d'Aitken ; (---) : radon ; (....) : ^{212}Pb ; mesurés le 29.06.72 à .

□ : à l'altitude de la côte
 0 : " " " "

La source océanique de ces 3 corps est négligeable, mais le radon en raison de sa longue période peut provenir de distances relativement grandes. On constate que les concentrations en ^{212}Pb et en radon augmentent lorsque l'on s'éloigne de la côte, ce qui correspond à l'augmentation du temps de séjour de la masse d'air au-dessus du continent.

Par contre, les concentrations en noyaux d'Aitken sont les plus importantes à 100 km de la côte. Cela correspond à une source de noyaux plus intense que l'on peut relier à une importante végétation de résineux dans la région des Landes et qui a été mise en évidence par ailleurs dans le chapitre II (§.II).

Les concentrations en ^{212}Pb et radon, sont dans ce cas (mesures effectuées, par régime océanique, près de la côte) caractéristiques du temps de séjour de la masse d'air au-dessus du continent. Avec les seules mesures de noyaux d'Aitken et pour le profil à 100 km, on aurait pu envisager une masse d'air ayant un trajet continental plus long. Une analyse météorologique de ce trajet avec les paramètres donnés par les quelques stations qui se trouvent dans la région est en effet très imprécise.

A partir des mesures précédentes (§.III), on peut admettre une "pseudo-période" de disparition pour les noyaux du même ordre de grandeur que la période de désintégration du ^{212}Pb . Cette hypothèse est vraisemblable dans les basses couches, car elle correspond aux phénomènes de coagulation qui sont prépondérants. On peut alors écrire, dans le cas des profils obtenus à 100 km de la côte, pour lesquels les gradients verticaux de concentration dans la couche de mélange sont faibles, que le rapport des concentrations entre noyaux et ^{212}Pb est égal au rapport des flux verticaux.

$$\frac{C_{\text{NA}}}{C_{^{212}\text{Pb}}} = \frac{\tau}{\phi_{^{212}\text{Pb}}}$$

$\phi_{^{212}\text{Pb}}$: intensité de la source de ^{212}Pb de l'ordre de $2.10^{-14}\text{Ci m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (GUEDALIA, 1974)

τ : intensité de la source de noyaux d'Aitken ramenée au niveau du sol.

Il faut remarquer qu'avec ce mode de calcul, on peut sous-estimer la valeur de la source de noyaux. En effet, la "pseudo-période" des noyaux résultant des phénomènes de coagulation sera plus grande près de la côte, la concentration en noyaux y étant plus faible.

Ce calcul conduit à un taux moyen de formation de noyaux d'Aitken dans la zone des Landes de 10^5 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, valeur en bon accord avec celle obtenue lors d'études différentes (chapitre II, §.II). Il est 3 fois plus grand que le taux de formation moyen, de l'ordre de 3.10^4 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, déterminé en zone rurale dans le Sud-Ouest de la France (chapitres II, §. III, ch. IV, §.IV).

Ces expériences montrent là encore l'intérêt du radon et du ^{212}Pb pour l'étude des sources et de l'évolution des noyaux d'Aitken à l'échelle mésométéorologique.

IV.3 - Capture par les nuages

Sur la figure 30 ont été représentés les profils verticaux de noyaux d'Aitken, ^{212}Pb , radon obtenus lors d'un vol effectué le 2/06/72. Une couche de cumulus en cours de développement (nébulosité : 5/8) se trouve entre 1500 et 1900 mètres. On constate à ce niveau une diminution très nette des teneurs en noyaux et ^{212}Pb mettant en évidence les phénomènes de lessivage. Dans le cas du radon, la décroissance de la concentration est due au fait que ce dernier a été détecté à partir de ses descendants solides.

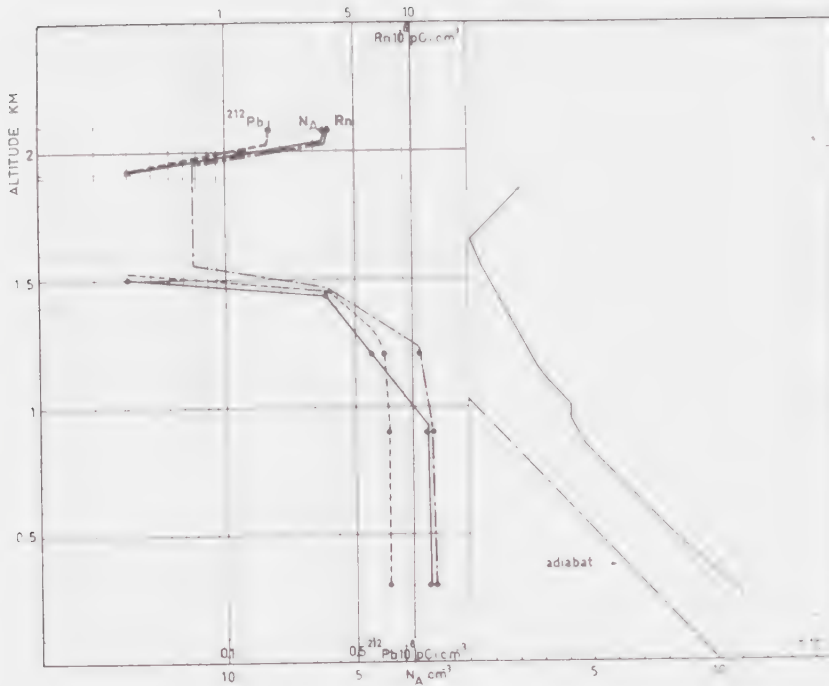


FIGURE 30 :
Profils verticaux
des concentrations
en noyaux d'Aitken
(N_A), radon et
 ^{212}Pb mesuré
1/10/72

V. COMPARAISON ENTRE LES QUANTITES TOTALES DE NOYAUX D'AITKEN, RADON ET ^{212}Pb CONTENUES DANS L'ATMOSPHERE

La quantité totale de noyaux d'Aitken qui se trouve dans une colonne d'air est fonction de l'intensité de la source, du temps de séjour de la masse d'air au-dessus des continents et des phénomènes de disparition par suite de la coagulation et du lessivage.

La quantité totale de ^{212}Pb , contenue dans la même colonne d'air est fonction du dégagement de thoron du sol, des phénomènes de lessivage et du temps de séjour continental de la masse d'air, si ce dernier est trop faible pour que la concentration de ^{212}Pb atteigne un équilibre.

La quantité totale de radon, contenue dans la colonne d'air, dépend essentiellement du temps passé par la masse d'air au-dessus du continent et de la source au sol qui doit en principe être moins variable que celle du ^{212}Pb , en particulier en fonction de l'humidité du sol.

Il est ainsi intéressant pour avoir des informations sur l'homogénéité de la source de noyaux d'Aitken et ses variations saisonnières, de comparer les quantités totales de ces 3 éléments contenues dans une même colonne d'air. On peut, par exemple, envisager une variation saisonnière de la composante naturelle des noyaux, s'ils sont produits par la végétation. De même, en ce qui concerne la production artificielle dans la mesure où elle provient du chauffage domestique.

La figure 31 montre pour toutes nos mesures, les variations des quantités totales contenues dans une même colonne d'air de noyaux d'Aitken, ^{212}Pb , radon. Nous avons représenté différemment les jours correspondants à des vents de secteur E-S.E. et de secteur O-N.O.. Les variations des concentrations de ^{212}Pb peuvent être dues aux variations de source et aux variations du temps de séjour continental de la masse d'air, lorsque celui-ci est inférieur à celui de la mise en équilibre. Nous avons représenté sur la figure 31 les valeurs de ^{212}Pb corrigées du temps de séjour, cette correction est effectuée à partir des données météorologiques, vitesse et direction

du vent (GUEDALIA, 1974). Les valeurs ainsi obtenues sont caractéristiques de la source de ^{212}Pb , leurs variations sont inférieures à un facteur 3.

Sur la figure 32, sont représentés les rapports $N_A/^{212}\text{Pb}$, N_A/Rn , $^{212}\text{Pb}/\text{Rn}$. Les rapports $N_A/^{212}\text{Pb}$, N_A/Rn varient respectivement d'un facteur 7 et 10. En ce qui concerne le rapport $^{212}\text{Pb}/\text{Rn}$, il varie d'un facteur 3. Le temps de séjour continental de la masse d'air qui, d'après les concentrations en radon varie dans les expériences d'un facteur 7 (en supposant constante la source de radon) n'entraîne que des variations inférieures à un facteur 3 du rapport $^{212}\text{Pb}/\text{Rn}$, inférieures à 3 puisque dans ce facteur se trouvent les variations de source de radon, mais surtout de ^{212}Pb .

Les variations des rapports $N_A/^{212}\text{Pb}$ et N_A/Rn ne peuvent être dues qu'à des sources différentes de noyaux d'Aitken d'une expérience à une autre. Le rapport plus faible $N_A/^{212}\text{Pb}$ confirme que la pseudo-période des noyaux d'Aitken est plus proche de celle du ^{212}Pb que de celle du radon.

Le nombre d'expériences que j'ai pu effectuer n'est cependant pas suffisant pour établir une relation entre l'intensité des sources, la direction du vent et la saison.

On observe en général moins de noyaux pour les situations avec des vents d'E.-S.E. (vent d'autan) (figure 31). Je n'ai malheureusement pas les valeurs correspondantes des concentrations en ^{212}Pb et radon. Elles auraient permis de préciser si ce nombre plus faible est bien dû, à un temps de séjour plus court de l'air sur le continent, à un lessivage, ou à une source de noyaux d'intensité plus faible.

En conclusion, on observe que les sources de noyaux d'Aitken sont plus variables que celles du radon et du ^{212}Pb . Les gradients verticaux des concentrations de noyaux sont cependant comparables à ceux du ^{212}Pb , ce qui montre que les sources de

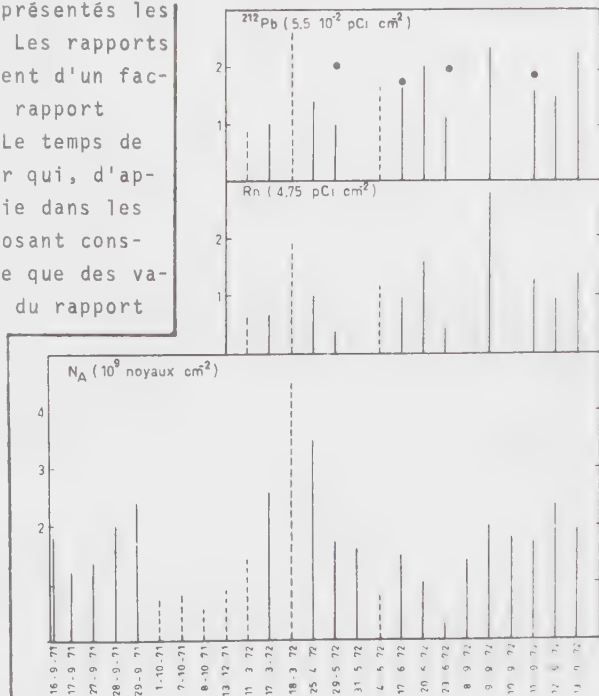


FIGURE 31: Quantités totales de noyaux d'Aitken, radon et ^{212}Pb contenues dans une colonne d'atmosphère de 1 cm^2 de section.

(—) : régime W-N.W.

(---) : régime E-S.E.

(•) : ^{212}Pb corrigé du temps de séjour

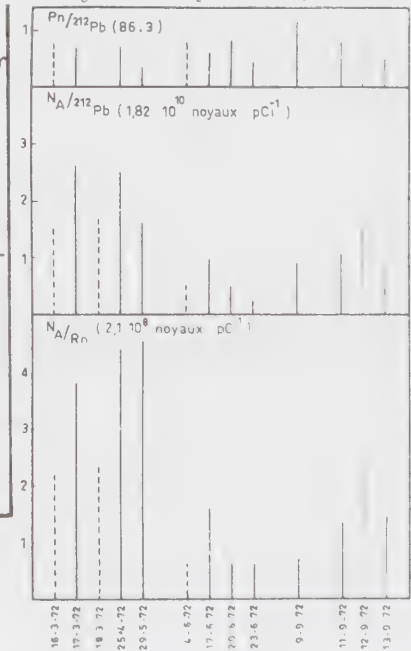


FIGURE 32 : Variation des rapports $N_A/^{212}\text{Pb}$, N_A/Rn , $\text{Rn}/^{212}\text{Pb}$.

(—) : régime N-N.W.

(---) : régime E-S.E.

noyaux sont réparties à la surface du continent. L'homogénéité de cette source est moins grande que celle du radon et du ^{212}Pb .

VI. CONCLUSION

J'ai montré dans ce chapitre, l'intérêt des traceurs radioactifs naturels, radon et ^{212}Pb pour l'étude des sources et de l'évolution des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère et de façon plus générale des constituants mineurs de l'atmosphère. Ils permettent dans l'interprétation des répartitions verticales de noyaux d'Aitken de s'affranchir d'une analyse météorologique souvent délicate. Ils donnent indirectement un paramètre particulièrement intéressant, l'intensité des échanges verticaux.

En comparant les profils de concentrations de ces traceurs à ceux des noyaux d'Aitken, j'ai pu préciser dans certaines circonstances

- un temps de vie apparent des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère proche de la période radioactive du ^{212}Pb (10,6 heures). Cette pseudo période dans les basses couches de l'atmosphère correspond sensiblement aux phénomènes de coagulation, en altitude il doit être lié aux phénomènes de lessivage ;
- un taux de production moyen de noyaux sur la zone forestière des Landes de 10^5 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. Cette valeur est en accord avec celle que j'ai déterminée précédemment (chapitre II, §.II) au moyen d'une méthode différente ;
- un taux de production au-dessus de la couche d'inversion de température la nuit, ou à la limite de la couche de mélange le jour faible. Ceci confirme les résultats obtenus dans le chapitre II (§.III).

Je pense que ces premiers résultats démontrent l'intérêt de ces mesures. Elles doivent être continuées pour nous permettre d'obtenir des résultats plus complets et plus généraux.

-:-:-:-

-:-

CHAPITRE IV

CARACTÉRISATION DE LA SOURCE DE NOYAUX D'AITKEN EN ZONE PEU POLLUÉE (1)

J'ai caractérisé dans les chapitres précédents les différentes sources de noyaux, naturelles et artificielles, du Sud-Ouest de la France par la mesure de leur intensité. En fait, d'autres paramètres, tels que les modes de formation et les caractéristiques physiques des noyaux émis sont des données qu'une étude complète des noyaux d'Aitken dans l'atmosphère doit préciser pour chacun des cas.

J'ai entrepris cette étude en me plaçant dans le cas le plus simple, celui d'une zone rurale peu polluée avec pour objectifs :

- d'examiner si dans une zone rurale en apparence peu polluée, l'origine des noyaux d'Aitken est bien naturelle ;
- de préciser près du sol l'importance relative des variations de stabilité de l'air et d'ensoleillement sur les concentrations en noyaux d'Aitken ;
- d'évaluer à partir des mesures effectuées au niveau du sol les taux de formation de noyaux d'Aitken ;
- d'étudier les variations des caractéristiques physiques des noyaux d'Aitken (grain dimension moyenne, fraction existant sous forme ionisée).

J'ai pour cela mesuré de façon continue au niveau du sol, sur un site rural peu pollué du Sud-Ouest de la France, les concentrations en noyaux d'Aitken, en particules ionisées et en radon, ainsi que la taille moyenne des particules.

J'ai montré dans le troisième chapitre une localisation de la source de noyaux d'Aitken dans la couche limite planétaire, zone à l'intérieur de laquelle on observe en général durant la journée une répartition homogène des concentrations. Les variations de concentration en noyaux d'Aitken observées au niveau du sol seront donc soumises d'une part à l'intensité de la source, d'autre part à l'intensité des échanges verticaux de matière dans les basses couches de l'atmosphère. Ceci est confirmé par les données bibliographiques qui mettent en évidence des variations journalières caractéristiques liées au lieu de prélèvement et à la saison.

ACKERMAN (1954) à Payerne, VERZAR (1954) à Saint Moritz observent l'apparition de deux maxima au lever et au coucher du soleil. Les mêmes variations ont été notées à Toulouse (CABROL, 1970), elles sont accentuées par beau temps, c'est-à-dire lorsque les variations de stabilité des basses couches le sont aussi. MULLER (1962) lors de mesures effectuées à Locarno-Monti sur le versant Sud des Alpes a mis en évidence une augmentation de la concentration en noyaux avec l'apparition du soleil, une valeur sensiblement constante durant la journée mais n'observe pas d'accroissement au coucher du soleil. Les paramètres mesurés par ces auteurs ne permettent pas de faire

(1) L'essentiel de ce chapitre a fait l'objet d'une publication au "Journal of Atmospheric Environment" (A. LOPEZ, J. SERVANT, J. FONTAN, 1973).

la part des différentes sources de variations.

Dans ce but, j'ai utilisé le radon comme indicateur des variations de stabilité des basses couches de l'atmosphère (SERVANT, 1964 ; DRUILHET, 1973).

I. MOYENS EXPERIMENTAUX

La concentration en noyaux est déterminée directement à l'aide de compteur autonome, automatique et portatif déjà décrit.

La dimension moyenne des particules est obtenue en mesurant le coefficient de diffusion moyen déterminé à l'aide de la batterie de diffusion constituée de 200 plaques parallèles et dont les caractéristiques sont données dans le chapitre I

La fraction de particules électriquement chargées est mesurée à l'aide du précipitateur électrostatique cylindrique décrit dans le chapitre I

Les variations de concentration en radon, qui sont comme je l'ai déjà signalé caractéristiques des variations de stabilité des basses couches de l'atmosphère sont mesurées par la méthode de la chambre de désintégration mise au point par FONTA (1964). Il faut noter que les variations des concentrations données sur les courbes, correspondent à l'enregistrement obtenu à la sortie de notre appareil. Les variations sont atténuées par la constante de temps de 40 min. correspondant à la pseudo-période des descendants du radon.

La vitesse et la direction du vent sont mesurées sur le site. L'humidité, la nébulosité (exprimée en octats) et la température de l'air sous abri sont données par la station de la Météorologie Nationale de Toulouse-Blagnac située environ à 30 kilomètres du site de mesure.

J'ai représenté les variations de l'ensoleillement par une relation empirique entre l'intensité relative de l'énergie solaire directe (I_0) et l'indice de nébulosité ($N/8$) déduite des travaux de FRITZ (1951).

$$I = I_0 (1 - 0,41 \frac{N}{8})$$

II. CARACTERISTIQUES DU SITE EXPERIMENTAL

Les prélèvements ont été faits à 30 kilomètres au Sud-Est de Toulouse, d'avril à juin 1971, à 5 mètres au-dessus du niveau du sol dans un site légèrement vallonné. Le point de mesure est éloigné dans un rayon de 10 kilomètres de toute agglomération supérieure à 2500 habitants. Le couvert végétal se compose principalement de céréales (blé, maïs, colza...).

Cette zone est sous l'influence de deux vents dominants de direction Sud-Est, appelé vent d'autan, et d'Ouest-Nord-Ouest. Le régime de vent du Sud-Est se caractérise :

- par des vents forts avec turbulence dans les basses couches (0-1500 mètres) ;
- par une élévation marquée des températures minimales ;
- en général, par un abaissement sensible de l'humidité relative de l'air.

Les vents Ouest-Nord-Ouest correspondent fréquemment à des perturbations.

Ce site peut être considéré comme peu pollué ; la concentration moyenne de l'air en plomb, mesurée sur des périodes de 8 jours, est de $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$. A titre de comparaison, elle est de l'ordre de $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (CROZAT, 1969) à 5 km du centre de la ville de Toulouse dans la direction Sud-Est.

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1 - Variations des concentrations en noyaux d'Aitken avec la direction du vent

Une variation des concentrations en noyaux d'Aitken pour certaines directions de vent, pourrait mettre en évidence un apport de noyaux d'Aitken d'origine industrielle ou urbaine.

On n'observe aucune variation simultanée significative entre la concentration horaire en noyaux et la direction du vent. Néanmoins, les concentrations moyennes en noyaux d'Aitken sont sensiblement 2 fois plus importantes par vent de Nord-Ouest que par vent de Sud-Est (tableau 11). Dans le premier cas, l'air est susceptible d'être passé sur la ville de Toulouse, mais dans les mêmes conditions, la concentration en radon varie aussi d'un rapport 2. Il semble donc que ce soit plus la variation de la diffusivité verticale de l'atmosphère, en particulier l'existence de stabilité nocturne plus marquée par régime Nord-Ouest, qui provoque l'augmentation de concentration en noyaux d'Aitken qu'un apport de la ville de Toulouse.

Pour mettre en évidence les différences éventuelles entre les deux régimes de vents dominants, j'ai tracé pour chaque direction, les courbes cumulatives du pourcentage du nombre de mesures horaires pour lesquelles, les concentrations sont inférieures à une certaine valeur (figure 33). Pour les deux directions de vent, concentrations en noyaux et en radon se répartissent suivant des distributions log-normale identiques à celles signalées par HOGAN (1966) et HAYES (1970) pour les mesures de noyaux sur différents sites.

$$f(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_g} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\log N - \log N_g}{\log \sigma_g} \right)^2 \right\}$$

N : concentration en noyaux ou en radon mesurée chaque heure

N_g : moyenne géométrique des concentrations horaires.

La moyenne arithmétique des concentrations N_{am} est obtenue à partir de la relation (IRANI, 1963) :

$$N_{am} = \exp \left(\log N_g + \frac{1}{2} (\log \sigma_g)^2 \right)$$

Les valeurs de N_g , σ_g , N_{am} correspondantes au radon et aux noyaux sont données, pour les 3 mois de mesures et pour l'ensemble de la campagne, dans le tableau 11. J'ai noté également les valeurs du rapport concentration en radon/concentration en noyaux.

On constate bien, comme je l'ai signalé, une augmentation de la concentration moyenne en noyaux et en radon par régime de Nord-Ouest d'un facteur 2. Le rapport entre les concentrations moyennes d'atomes de radon et de noyaux d'Aitken varie peu, entre $4,1 \cdot 10^{-5}$ et $5,3 \cdot 10^{-5}$ atome de Rn.noyaux⁻¹.

C'est le radon qui présente la plus grande dispersion des résultats, et ceci surtout par régime de Nord-Ouest. Cela est vraisemblablement dû à la variation journalière de la stabilité de l'air plus marquée par régime d'Ouest-Nord-Ouest, que de Sud-Est.

		AVRIL		MAI		JUN		MOYENNE 3 mois de mesure	
		SE	N-NO	SE	ON-NO	SE	N-NO	SE	N-NO
NOYAUX	N_g p. cm ³	9 000	14 000	8 000	15 000	8 000	16 000	8 000	15 000
	σ_g	1,2	1,8	1,0	1,5	1,2	1,8	1,2	1,8
	N_{am} p. cm ³	9 400	14 500	8 400	15 500	8 400	16 500	8 400	15 500
RADON	N_g at. cm ³	0,34	0,4	0,3	0,4	0,3	0,4	0,3	0,4
	σ_g	1,1	1	1,1	1,1	1,1	1,1	1,1	1,1
	N_{am} at. cm ³	0,44	0,5	0,4	0,5	0,4	0,5	0,4	0,5
(N _{am}) Radon		4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷
(N _{am}) Noyaux		4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷	4,1.10 ⁻⁷	4,2.10 ⁻⁷

TABLEAU 11 : Valeurs de N_g , σ_g , N_{am} pour le ... les deux régimes de vent dominant (Sud-Est, ...)

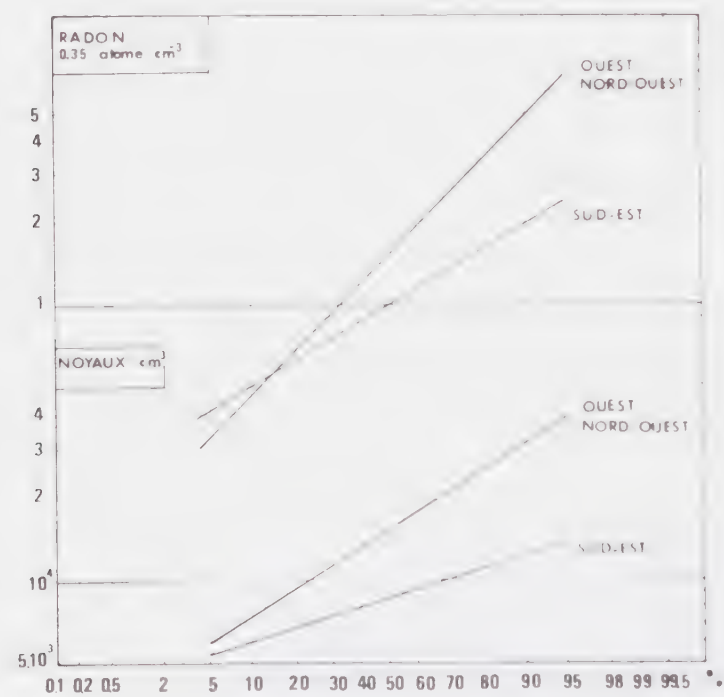


FIGURE 33 : Courbes cumulatives du pourcentage ... horaires pour lesquelles les concentrations ... en radon sont inférieures à un certain va ... tion de la direction du vent.

III.2 : variation des concentrations en noyaux observées au niveau du sol, en fonction de l'intensité des échanges verticaux de matière dans l'atmosphère

III.2.1 : Variation des concentrations en radon

Comme je l'ai signalé, de nombreuses expériences ont mis en évidence, tout au moins en laboratoire, la formation de noyaux d'Aitken par réaction de proto-lyse.

Pour étudier les variations des concentrations des noyaux en fonction de l'intensité des échanges verticaux, il faut donc éliminer la composante liée à l'ensoleillement.

J'ai comparé les variations des concentrations en radon et en noyaux du-

rant la nuit et durant les périodes de forte nébulosité. On observe en général, une variation semblable des concentrations en radon et en noyaux, ceci est indiqué pour les périodes de faible ensoleillement sur les figures 34 et 35 et pour les nuits sur les figures 35 à 45 à l'exclusion du cas mentionné figure 43 pour lequel la concentration nocturne en noyaux était anormalement élevée ; probablement due à une pollution locale.

Le rapport des concentrations radon/noyaux est sensiblement constant sur ces périodes et est compris entre $5,3 \cdot 10^{-5}$ et $7 \cdot 10^{-5}$ atome de Rn. noyaux⁻¹.

Par période nocturne, il faut signaler que je n'ai jamais obtenu pendant la période de mesure de variations très importantes de la stabilité verticale (variation de la concentration en radon inférieure à un facteur 4).

Ces résultats font apparaître :

- une source nocturne de noyaux, sensiblement du même ordre de grandeur que celle observée par période de forte nébulosité ;
- une source de noyaux, ou de constituants mineurs qui leur donne naissance, localisée près du sol et uniformément répartie comme celle du radon.

B. AVEC L'ENSOLEILLEMENT

J'ai considéré les cas où il y a des variations irrégulières de l'ensoleillement accompagnées d'une concentration en radon peu variable, ce qui traduit une variation diurne peu marquée de la stabilité verticale (figures 36 à 39). On observe avec l'ensoleillement une augmentation rapide (entre 1 et 2 h) de la concentration en noyaux. Le rapport des concentrations radon/noyaux (plus intéressant, puisque nous avons vu qu'en l'absence de formation par réaction photochimique, il est pratiquement constant) varie d'un facteur 2 avec l'apparition du soleil et a une valeur comprise entre $1,7 \cdot 10^{-5}$ et $3,5 \cdot 10^{-5}$ atome de Rn. noyaux⁻¹.

On observe donc que les réactions photolytiques doublent la concentration en noyaux d'Aitken.

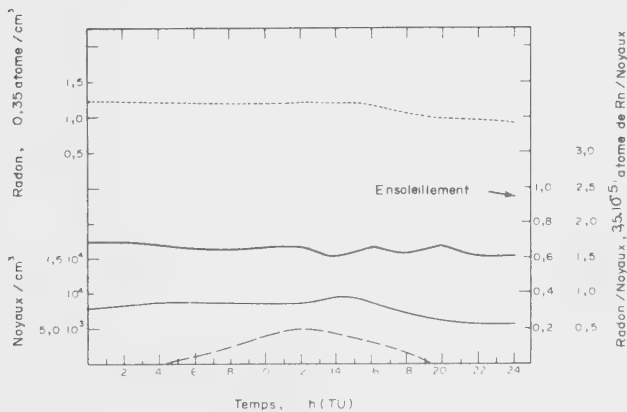


FIGURE 34 : Journée du 16, 06/71
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en noyaux
(- - -) : en radon
(- · - ·) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

C. VARIATIONS DIURNES PAR BEAU TEMPS

On retrouve sur les figures 41 à 44, les variations signalées par VERZAR (1954), ACKERMAN (1954), CABROL (1970), c'est-à-dire deux maxima : un le matin et un le soir.

Ils sont dus à l'augmentation de la stabilité verticale de l'atmosphère. Le rapport des concentrations radon/noyaux est voisin de $7 \cdot 10^{-5}$ la nuit et de $3,5 \cdot 10^{-5}$ (atome de Rn. noyaux⁻¹) le jour. Cette dernière valeur est caractéristique de la formation des noyaux avec l'ensoleillement.

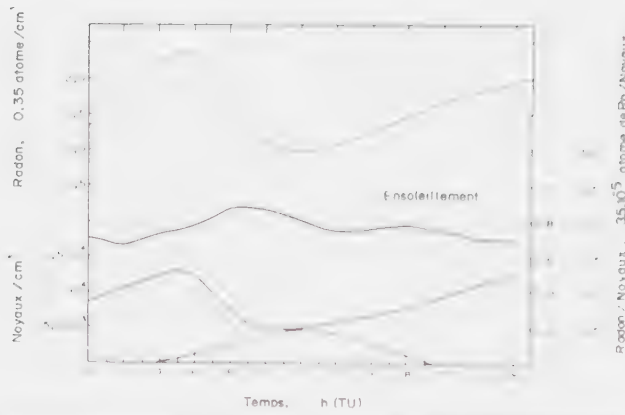


FIGURE 35 : Journée du 31/04/71
Variations, en fonction du temps
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon,

FIGURE 36 : Journée du 13/04/71
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

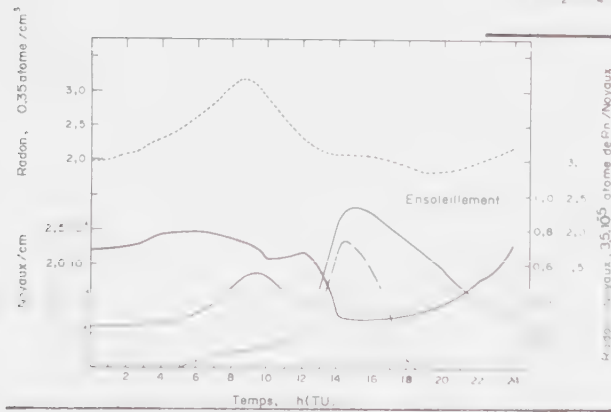
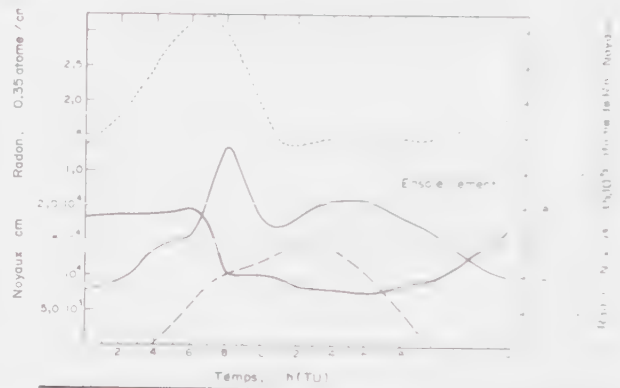
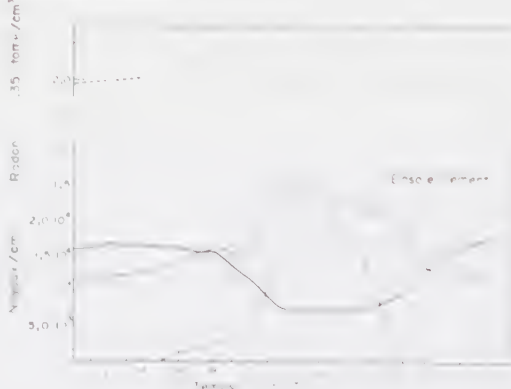


FIGURE 37 : Journée du 16/04/71
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

FIGURE 38 : Journée du 16/04/71
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.



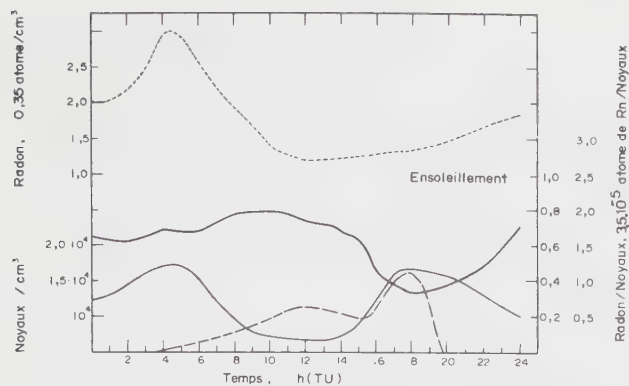


FIGURE 39 : Journée du 21/06/71.
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

FIGURE 40 : Journée du 23/06/71.
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

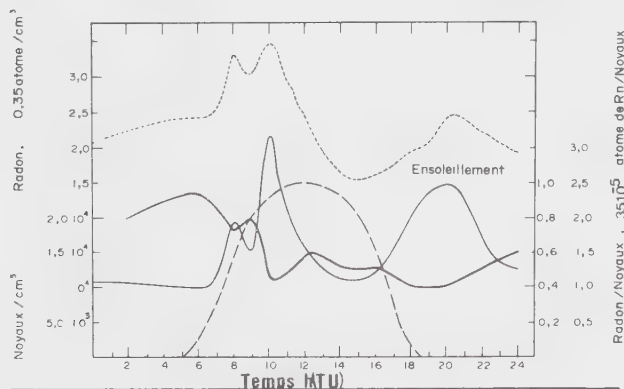
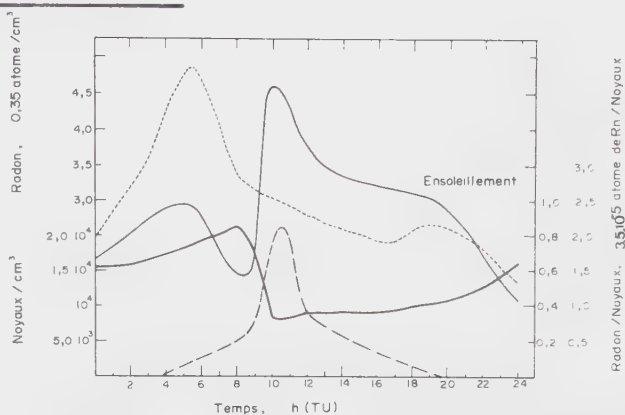
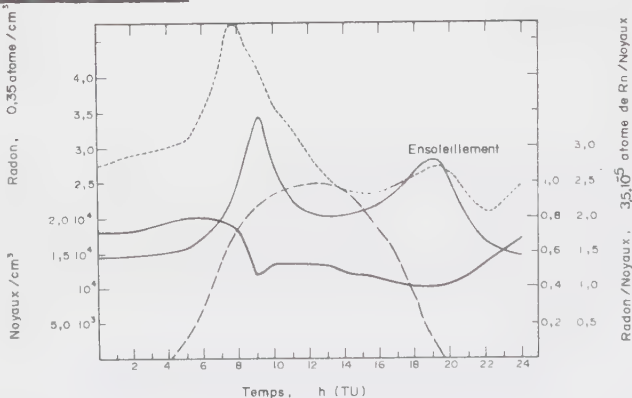


FIGURE 41 : Journée du 13/06/71.
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

FIGURE 42 : Journée du 15/06/71.
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en noyaux
(---) : en radon
(- - -) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.



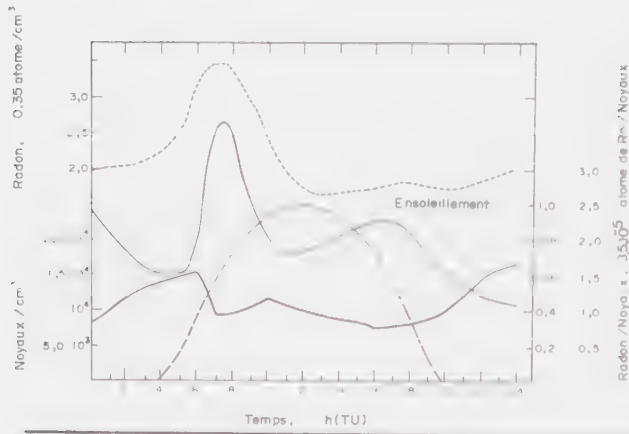


FIGURE 43 : Journée du 22/06/71.
Variations en fonction du temps
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(-.-) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

FIGURE 44 : Journée du 25/06/71.
Variations en fonction du temps :
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(-.-) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

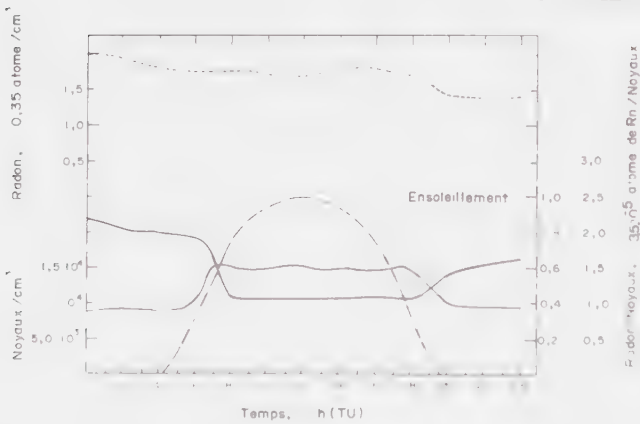
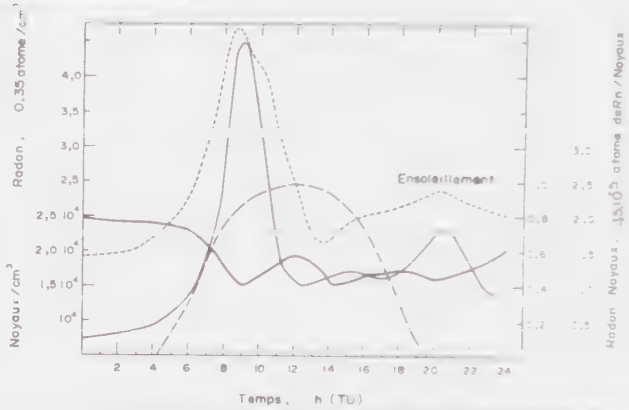


FIGURE 45 : Journée du 27/06/71.
Variations en fonction du temps
(—) : des concentrations en
noyaux
(---) : en radon
(-.-) : de l'ensoleillement
(—) : du rapport radon/noyaux.

Sur la figure 45, comme l'a signalé MULLER (1962), on observe une augmentation au lever du soleil, une valeur pratiquement constante dans la journée et une décroissance au coucher du soleil. Cette variation est obtenue par période de vent de Sud-Est ; la concentration en radon varie peu, ce qui traduit une faible évolution diurne de la stabilité verticale.

III.3 - Analyse statistique des résultats

J'ai montré dans les paragraphes précédents, à partir de cas particuliers

convenablement choisis, l'influence de la stabilité et de l'ensoleillement sur les concentrations en noyaux mesurées au niveau du sol. Je présente maintenant une analyse statistique de ces différentes données, qui a été effectuée sur l'ensemble de la campagne de mesure, c'est-à-dire sur une période de 3 mois comprise entre mai et juin.

A. VARIATIONS JOURNALIERES MOYENNES

La figure 46 représente les variations journalières moyennes des concentrations en radon et en noyaux obtenues en faisant la moyenne arithmétique des concentrations horaires de ces deux éléments.

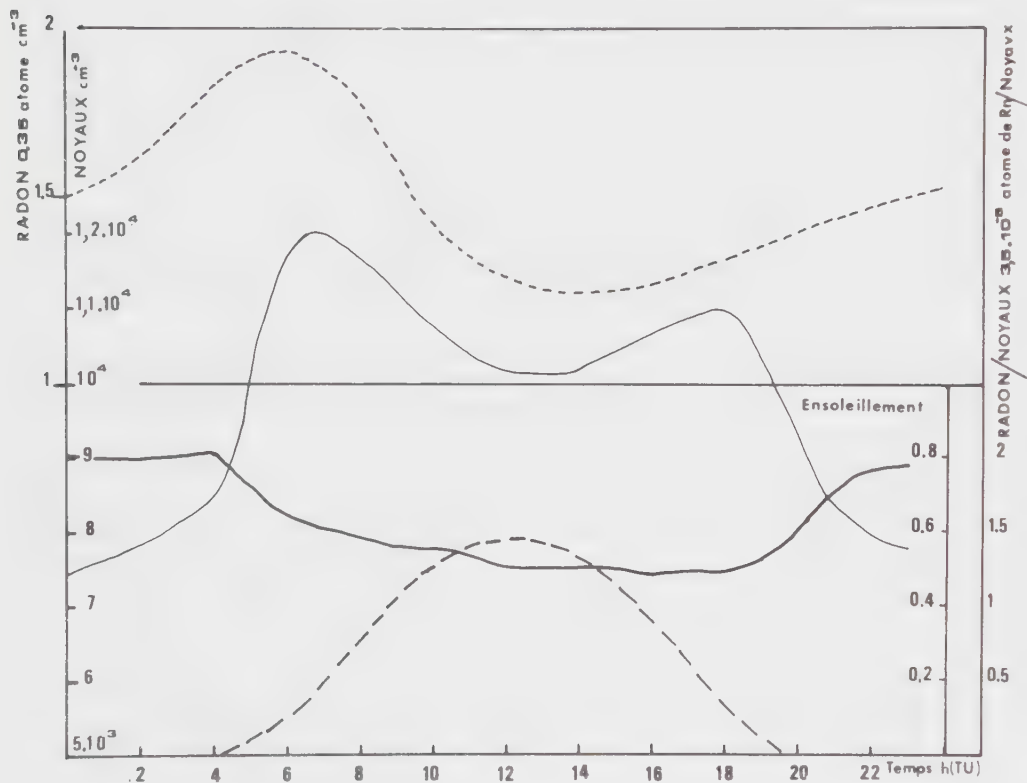


FIGURE 46 : Variation journalière moyenne : (---) : des concentrations en radon ; (—) : en noyaux ; (- - -) : de l'ensoleillement ; (—) : du rapport radon/noyaux.

La variation journalière moyenne du radon est représentative de celle de la stabilité des basses couches de l'atmosphère. Son amplitude, d'un facteur 2, est relativement faible. Ceci est principalement dû au fait que l'on intègre sur ces courbes les différentes situations météorologiques, en particulier les régimes de vent de Sud-Est caractérisés par une forte turbulence et une faible variation journalière de stabilité.

En ce qui concerne les noyaux, la variation journalière moyenne présente 2 maxima, qui sont liés d'une part aux variations de stabilité, d'autre part à l'ensoleillement qui, comme nous l'avons vu sur des cas individuels, correspond à une augmentation de l'intensité diurne de la source de noyaux.

Comme pour le radon, on constate une amplitude de variation relativement faible. Ceci est du d'une part aux faibles variations en moyenne de la stabilité, d'autre part à la courbe de l'ensoleillement qui en moyenne a des variations atténuées par rapport aux variations journalières par beau temps. En ce qui concerne le rapport radon/noyaux, on trouve une valeur moyenne nocturne de 7.10^{-5} , diurne de $4,2.10^{-5}$. On retrouve donc, bien nettement, le phénomène mis en évidence sur des courbes individuelles.

B. CORRELATION ENTRE LE RAPPORT RADON/NOYAUX ET L'ENSOLEILLEMENT

J'ai montré dans les paragraphes précédents un rapport radon/noyaux pratiquement constant la nuit (de l'ordre de 7.10^{-5}) plus faible le jour (la valeur diurne étant fonction de l'ensoleillement). L'étude de ce rapport est particulièrement intéressante, puisque comme nous le verrons par la suite il est représentatif des variations d'intensité de la source. J'ai porté sur la figure 47, la valeur diurne moyenne du rapport radon/noyaux, en fonction de l'ensoleillement journalier moyen. Ces valeurs se répartissent dans un nuage relativement bien réparti autour d'une droite, mettant en évidence une corrélation entre ces deux paramètres.

Cette corrélation signifie qu'il existe une relation entre l'ensoleillement et l'intensité de la source de noyaux. Cela confirme les résultats illustrés par les courbes individuelles.

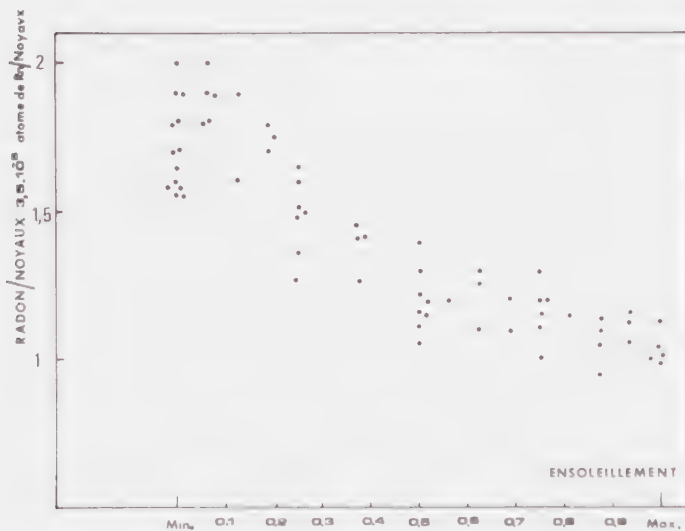


FIGURE 47 : Valeur moyenne diurne du rapport radon/noyaux en fonction de l'ensoleillement moyen.

- . L'ensoleillement maximum correspond à une journée avec ensoleillement total (nébulosité nulle : 0/8)
- . L'ensoleillement minimum correspond à une journée avec ensoleillement faible (nébulosité max. : 8/8).

IV. EVALUATION DU Taux DE FORMATION DES NOYAUX D'AITKEN

L'intensité de la source rurale de noyaux d'Aitken peut être évaluée à partir des mesures que j'ai effectuées près du sol. En effet les variations simultanées au sol des concentrations en radon et en noyaux laissent supposer l'existence d'une source de noyaux dans les basses couches de l'atmosphère. Néanmoins il est probable que les réactions de photolyse s'adressent à des gaz émis au sol qui diffusent dans les basses couches de l'atmosphère comme le radon. D'autre part, les mesures que j'ai effectuées en altitude montrent en général une répartition homogène de ces deux constituants dans la couche de mélange,

et une création de noyaux au-dessus de cette couche faible.

A partir de ces résultats, l'intensité de la source rurale de noyaux peut être calculée au moyen d'un premier modèle avec les hypothèses simplificatrices suivantes :

- répartition homogène dans un réservoir. On admet que la dispersion verticale est effectuée avec une intensité suffisante pour que les concentrations soient constantes dans un réservoir de hauteur variable.

- une source de noyaux non localisée dans la couche de mélange.

- on tient compte de la coagulation des noyaux, paramètre important dans l'évolution des concentrations de matières solides. Le dépôt au sol est négligé.

- on considère des variations de concentration de radon et de noyaux d'Aitken sur des intervalles de temps de 3 heures.

RADON :

L'évolution en fonction du temps de la concentration en radon s'écrit :

$$\frac{dC_R(t)}{dt} = \frac{\phi_R}{h} - \lambda_R C_R(t)$$

$$C_R(t) = \frac{\phi_R}{\lambda_R h} (1 - \exp(-\lambda_R t)) + C_R(0) \exp(-\lambda_R t) \quad (18)$$

ϕ_R : intensité de la source de radon. Je pose $\phi_R = 0,7 \text{ atomes cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, qui peut être considéré comme la valeur moyenne du dégagement au-dessus d'un continent, (ISRAEL, 1951)

$C_R(t)$: concentration d'atomes de Rn à l'instant t (atome cm^{-3})

h : hauteur de la couche où se produit le mélange

λ_R : constante de désintégration du radon.

NOYAUX :

L'évolution en fonction du temps, compte-tenu du phénomène de coagulation, s'écrit (chapitre II, § I.4).

$$\frac{dC_N(t)}{dt} = \frac{\tau}{h} - k C_N^2(t)$$

τ : taux de formation de noyaux par seconde dans une colonne de la couche de mélange de 1 cm^2 de section (part. $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)

$C_N(t)$: concentration de noyaux à l'instant t (noyaux cm^{-3})

h : hauteur de la couche de mélange

k : constante de coagulation : $10^{-9} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ pour des particules de rayon moyen $3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$

τ/h : taux de formation volumique moyen dans la colonne de hauteur h .

La résolution de cette équation donne :

$$C_N(t) = \sqrt{\frac{\tau}{kh}} \left| \frac{\exp\left(2\sqrt{\frac{k\tau}{h}} t + 2\sqrt{\frac{k\tau}{h}}^{-1} C_N(0)\sqrt{\frac{kh}{\tau}} - 1\right)}{\exp\left(2\sqrt{\frac{k\tau}{h}} t + 2\sqrt{\frac{k\tau}{h}}^{-1} C_N(0)\sqrt{\frac{kh}{\tau}} + 1\right)} \right| \quad (19)$$

si $C_N(t) < \sqrt{\frac{\tau}{kh}}$

$$C_N(t) = \sqrt{\frac{\tau}{kh}} \left[\frac{\exp \left(-2 \sqrt{\frac{k}{h}} t + 2 \coth^{-1} \left(C_N(0) \sqrt{\frac{kh}{\tau}} - 1 \right) \right)}{\exp \left(2 \sqrt{\frac{k}{h}} t + 2 \coth^{-1} \left(C_N(0) \sqrt{\frac{kh}{\tau}} - 1 \right) \right)} \right] \quad (20)$$

Dans le cas où $\tau = 0$, l'équation (20) donne la formule de coagulation classique :

$$C_N(t) = \frac{C_N(0)}{1 + k C_N(0) t}$$

Des abaques ont été tracées respectivement pour le radon et les noyaux, pour différentes valeurs de ϕ_R/h et τ/h (annexe II).

J'ai porté sur le tableau 12 les valeurs des taux de formation de noyaux, obtenues à l'aide de ce modèle pour différentes périodes de la journée.

On obtient des taux de formation compris :

- la nuit, entre 10^3 et 6.10^3 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$;
- le jour, entre 10^4 et 2.10^5 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

La variation journalière moyenne obtenue sur l'ensemble des 3 mois de mesure donne des taux de formation moyen de 5.10^3 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ la nuit, et 2.10^4 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ le jour. Ces valeurs ne doivent bien sûr être considérées que comme des ordres de grandeur, pour la formation locale des noyaux d'Aitken. Elles confirment cependant, celles que j'ai obtenues dans le chapitre I, § III.

REMARQUE

Nous avons admis jusqu'à présent l'équation d'évolution des concentrations en noyaux donnée par ZEBEL (1966). Elle suppose que le coefficient de coagulation des particules ne varie pas en fonction du temps. Ceci est réalisé en pratique lorsque le spectre initial des particules est peu dispersé et lorsque les particules sont grosses (de l'ordre de 10^{-6}cm de rayon). En effet, la coagulation entraîne une variation du spectre granulométrique. La répartition sur le coefficient de coagulation est plus sensible dans le cas de fines particules.

L'influence de la coagulation se traduit par une diminution des concentrations, par une augmentation de la dimension des particules par un accroissement de la dispersion du spectre granulométrique DEVIR (1963, 1966), HIDY (1965), WILLIS (1967), STOREBO (1971), SUTUGIN (1973), WALTER (1973). L'augmentation de la polydispersion entraîne une augmentation du coefficient de coagulation qui est atténuée par l'augmentation du rayon moyen des particules, lorsqu'il est supérieur à 10^{-6}cm , et qui est amplifiée lorsqu'il est inférieur à 10^{-6}cm . DERJAGUIN (1948) montre que pour des gammes de dimensions supérieures à 10^{-6}cm , les deux phénomènes se compensent et que l'approximation d'un coefficient de coagulation constant en fonction du temps

est valable. Pour des particules plus fines, par contre, on doit noter une augmentation du coefficient de coagulation en fonction du temps.

Le problème qui se pose pour appliquer l'équation de ZEBEL est de savoir si au départ les noyaux sont formés par des germes de petites dimensions qui coagulent. WALTER (1973) a étudié le problème de la coagulation de germes en résolvant l'équation générale de la coagulation de particules sphériques polydispersées de SMOLUCHOWSKI (1916) et MULLER (1926). Il donne des courbes d'évolution des concentrations et du spectre granulométrique pour des taux de formation de particules primaires de $1,2 \cdot 10^{-7}$ cm de rayon compris entre 10^6 et 10^2 particules $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$.

On peut utiliser les résultats de WALTER pour montrer que dans l'atmosphère en zone rurale peu polluée, les particules ne se forment pas par le seul processus de coagulation.

J'observe fréquemment des variations de concentration de $5 \cdot 10^3$ à $2 \cdot 10^4$ particules cm^{-3} en 2 heures, soit une augmentation de $1,5 \cdot 10^4$ particules cm^{-3} liée à l'augmentation diurne de l'intensité de la source. La moyenne arithmétique du rayon des noyaux évaluée à l'aide d'une batterie de diffusion se situe vers $3 \cdot 10^{-6}$ cm (§ V). Si l'on admet que les $1,5 \cdot 10^4$ particules cm^{-3} se sont formées par coagulation, il faut $4 \cdot 10^8$ germes de 10^{-7} cm. Ce chiffre est une estimation minimale étant donné que la dimension moyenne correspondant au volume sera plus grande que la valeur donnée par le coefficient de diffusion, c'est-à-dire $3 \cdot 10^{-6}$ cm. Or, le nombre total de germes ayant coagulés doit se calculer à partir de la dimension moyenne volumique, le chiffre de $4 \cdot 10^8$ germes est donc une estimation par défaut.

Les variations de concentration se produisent en 2 heures, on doit avoir au minimum une formation de $5,4 \cdot 10^4$ particules $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$, en supposant comme dans les calculs de Walter une formation continue. Pour obtenir ce taux d'agglomération, il faudrait des concentrations de l'ordre de 10^6 particules cm^{-3} . En effet, le nombre de particules qui disparaissent par coagulation est donné par l'expression :

$$\frac{dn}{dt} = -Kn^2$$

K : coefficient de coagulation ; n : concentration en particules.

En prenant pour K une valeur défavorable, c'est-à-dire grande ($5 \cdot 10^{-8} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$, ce qui en fait correspondrait à des particules de rayon 10^{-7} et $3 \cdot 10^{-6}$ cm) on obtient des concentrations de l'ordre de 10^6 particules cm^{-3} .

On peut aussi faire une estimation en utilisant les résultats de Walter. Un taux de formation de 10^2 germes de $1,2 \cdot 10^{-7}$ cm en présence de 2700 particules cm^{-3} de 10^{-5} cm, conduit à des concentrations de l'ordre de 10^5 particules cm^{-3} . Nous devrions en avoir plus puisque le taux de production est supérieur dans notre cas et les particules présentes initialement ont une dimension moyenne plus petite. Un taux de production de 10^6 germes $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ conduirait à des concentrations de l'ordre de 10^8 noyaux cm^{-3} .

On peut donc admettre, que dans nos conditions, où le taux de production est supérieur à $5,4 \cdot 10^4$ particules $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$, les concentrations seraient comprises entre 10^5 et 10^8 noyaux cm^{-3} , ce qui est incompatible avec nos résultats expérimentaux.

La critique que l'on peut faire à ce calcul est que les particules peuvent ne pas être détectées étant donné la dimension des germes.

On peut reprendre le même raisonnement avec des germes de taille supérieure c'est-à-dire 5.10^{-7} cm par exemple, qui sont détectés par mon compteur. Dans ce cas, la formation de $1,5.10^4$ particules cm^{-3} de rayon moyen 3.10^{-6} cm nécessiterait un taux de formation supérieur à 480 particules $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$. Les courbes de Walter calculées pour un rayon de $1,2.10^{-7}$ cm donneraient pour ce taux de génération des concentrations supérieures à 10^5 particules cm^{-3} . Pour des germes de taille supérieure que nous considérons ici, les concentrations ne pourraient être que plus grande, l'intensité des phénomènes de coagulation étant plus faible.

Ceci est donc incompatible avec nos résultats expérimentaux.

Ces différentes raisons, me conduisent à penser que les hypothèses de Walter d'une génération embryonnaire suivie uniquement de coagulation ne peuvent correspondre à nos résultats expérimentaux. Ce dernier point est d'ailleurs confirmé par Walter lui-même lorsqu'il veut appliquer ses calculs théoriques à l'atmosphère. Ils confirment par ailleurs les mesures de BRICARD (1972), où en zone non polluée les concentrations en fines particules (dimension inférieure à 3.10^{-6} cm) sont faibles.

Dans le cas d'une génération embryonnaire, on peut donc penser que les phénomènes de coagulation ne sont pas les seuls responsables de l'évolution dimensionnelle des particules ; les phénomènes de condensation pourraient dans ce cas jouer un rôle important.

Les variations de la dimension moyenne des particules que nous observons (chapitre V) suivent relativement bien celle de l'humidité relative qui varie en moyenne dans nos conditions expérimentales entre 90 % la nuit et 70 % le jour. Le même phénomène de grossissement a été observé par plusieurs auteurs pour des particules dont le rayon est supérieur à $0,1 \mu$ lorsque l'humidité relative dépasse 70. Ceci n'est qu'un argument en faveur de l'influence de la condensation de vapeur d'eau sans toutefois que l'on puisse apporter une conclusion sur un effet éventuel de l'humidité relative.

En conclusion, les calculs de Walter montrent que les noyaux d'Aitken que je détecte en zone non polluée, ne peuvent pas résulter de la seule coagulation de germes, on observerait dans ce cas des variations de concentration très importantes. Elles ne seraient pas corrélées avec le radon qui explique bien les variations de noyaux d'Aitken en fonction des variations de stabilité des basses couches de l'atmosphère.

D'après les calculs de Walter les variations en fonction du temps des concentrations ne seraient pas dues au cycle diurne de la stabilité des basses couches. Ceci est contraire à mes résultats.

Une étude plus fine du spectre granulométrique, en même temps que l'étude de la variation des concentrations en fonction du temps et celle de la stabilité verticale doit permettre de préciser ces différents points.

A partir d'hypothèses simplificatrices différentes, on peut faire une autre estimation du taux de formation des noyaux d'Aitken.

On considère une masse d'air océanique qui se charge progressivement sur le continent en noyaux et en radon. On admet :

- que la dispersion verticale est effectuée avec une intensité suffisante pour que les concentrations en radon et en noyaux soient constantes dans un réservoir de hauteur différente le jour (h_j) et la nuit (h_n) ;

- que la coagulation des aérosols est assimilable à une constante de disparition de la forme :

$$\lambda_N = kC_N$$

k : constante de coagulation ($10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)

C_N : concentration moyenne en noyaux = 10^4 particules cm^{-3}

$\lambda_N = 10^{-5} \text{s}^{-1}$, ce qui correspond à une pseudo-période d'environ 19 heures.

Cette hypothèse est bien sûr grossière, puisque la constante de disparition, étant proportionnelle à la concentration en noyaux, elle doit varier avec cette dernière. Il faut cependant remarquer que la valeur ainsi introduite est du même ordre de grandeur que celle qui a été déterminée expérimentalement dans la chapitre précédent.

Date	Nuit U-b n	Jour		Remarques
		Apparition du soleil	16h - 20h	
13/04/71	10^3	$4 \cdot 10^4$	$4,5 \cdot 10^4$	Journée avec ensoleillement continu
14/04/71	$4,5 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^5$	(1)	Apparition du soleil : 14h T.U.
15/04/71	$3 \cdot 10^3$	10^5	(1)	Apparition du soleil : 12 h T.U.
15/05/71	$6 \cdot 10^3$	10^4	10^4	Forte nébulosité
13/06/71	$6 \cdot 10^3$	$6 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^4$	Journée avec ensoleillement continu
15/06/71	$4 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^4$	Journée avec ensoleillement continu
21/06/71	$3 \cdot 10^3$	10^5	(1)	Apparition du soleil : 17 h T.U.
22/06/71	(1)	$7 \cdot 10^4$	$6 \cdot 10^4$	Journée avec ensoleillement continu
23/06/71	$6 \cdot 10^3$	$7 \cdot 10^4$	(1)	Apparition du soleil : 10 h T.U.
24/06/71	$5 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^4$	Journée avec ensoleillement continu
Valeur moyenne	$5 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^4$	10^4	Les valeurs moyennes correspondent aux moyennes arithmétiques obtenues sur les 3 mois de mesure
Valeur moyen- ne par régime Ouest-Nord- Ouest	$6 \cdot 10^3$	$3 \cdot 10^4$	(1)	Les valeurs moyennes correspondent aux moyennes arithmétiques obtenues par régime d' Ouest-Nord-Ouest sur les 3 mois de mesure

(1) Il ne nous a pas été possible de calculer un taux de formation à cause de la très faible variation de la concentration en radon en fonction du temps.

Tableau 12 : Evaluation du taux de formation des noyaux d'Aitken ($\text{part.cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) (formation locale).

- pour tenir compte des phénomènes de photolyse, le taux de formation de noyaux τ se décompose en $(\tau)_j$: taux de formation diurne et $(\tau)_n$: taux de formation nocturne.

- que le temps de séjour continental de la masse d'air, lors de son passage sur le point de mesure est de l'ordre de 20 heures (situation correspondant fréquemment à des vents d'Ouest-Nord-Ouest).

Une masse d'air qui arrive en fin de journée au lieu d'expérimentation a parcouru un trajet sur le continent, effectué pendant 8 heures de nuit et 12 heures de jour. Celle qui arrive en fin de nuit a parcouru un trajet effectué pendant 8 heures de jour et 12 heures de nuit.

On suppose enfin que les concentrations en radon et en noyaux sont nulles au-dessus de la mer.

L'évolution des concentrations en fonction du temps est alors donnée par l'équation générale :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{I}{h}$$

I : intensité de la source de l'élément C (λ_R pour le radon, τ pour les noyaux)

RADON :

- pour les concentrations diurnes :

$$(C_R)_j = \frac{I_R}{\lambda_R h_j} (1 - \exp - \lambda_R t) \quad (21)$$

- pour les concentrations nocturnes :

$$(C_R)_n = \frac{I_R}{\lambda_R h_j} (1 - \exp - \lambda_R t_1) \exp - \lambda_R t_2 + \frac{I_R}{\lambda_R h_n} (1 - \exp - \lambda_R t_2)$$

$(C_R)_j, (C_R)_n$: respectivement les concentrations de radon en fin de période diurne et nocturne (atome cm^{-3})

ϕ_R : flux d'atome de radon = 0,7 atomes $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (ISRAEL, 1951)

λ_R : constante de désintégration du radon

t : 20 heures

t_1 : 8 heures

t_2 : 12 heures

h_j, h_n : hauteur du réservoir le jour et la nuit.

On posera :

$$h_j = p \cdot h_n$$

A partir des équations (21) et (22), on obtient

$$p = \frac{(C_R)_n (1 - \exp - \lambda_R t) + (C_R)_j \exp - \lambda_R t_1}{(1 - \exp - \lambda_R t_2) (C_R)_j} \quad (23)$$

NOYAUX :

- pour les concentrations nocturnes :

$$(C_N)_n = \frac{(\tau)_n}{\lambda_N h_n} (1 - \exp - \lambda_N t_2) + \frac{(\tau)_j}{\lambda_N h_j} (1 - \exp - \lambda_N t_1) \exp - \lambda_N t_2 \quad (24)$$

- pour les concentrations diurnes :

$$(C_N)_j = \frac{(\tau)_j}{\lambda_N h_j} (1 - \exp - \lambda_N t_2) + \frac{(\tau)_n}{\lambda_N h_n} (1 - \exp - \lambda_N t_1) \exp - \lambda_N t_2 \quad (25)$$

$(C_N)_j, (C_N)_n$: respectivement les concentrations en noyaux en fin de période diurne et nocturne (noyaux cm^{-3})

$(\tau)_j, (\tau)_n$: respectivement les taux de formation par seconde de noyaux, diurne et nocturne dans une colonne de 1 cm^2 de section (particule $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$)

λ_N : constante de disparition due à la coagulation égale à 10^{-5}s^{-1}

La comparaison des équations (21, 22, 24, 25) donne :

$$\left(\frac{C_R}{C_N}\right)_j = \frac{\phi_R (1-\exp-\lambda_R t)}{(\tau)_j (1-\exp-\lambda_N t_2) + (\tau)_n (1-\exp-\lambda_N t_1) \exp - \lambda_N t_2} \cdot \frac{\lambda_N}{\lambda_R} \quad (26)$$

$$\left(\frac{C_R}{C_N}\right)_n = \frac{\phi_R ((1-\exp-\lambda_R t_1) \exp-\lambda_R t_2 + p(1-\exp-\lambda_R t_2))}{p(\tau)_n (1-\exp-\lambda_N t_2) + (\tau)_j \cdot (1-\exp-\lambda_N t_1) \exp-\lambda_N t_2} \cdot \frac{\lambda_N}{\lambda_R} \quad (27)$$

J'ai porté sur le tableau 13 les valeurs des taux de formation nocturne $(\tau)_n$ et diurne $(\tau)_j$ correspondant à des journées avec régime d'Ouest-Nord-Ouest.

La nuit on obtient un taux de formation continental compris entre $3,5 \cdot 10^3$ et 10^4 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ tandis que le jour il varie entre $3 \cdot 10^4$ et $5 \cdot 10^4$ particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ suivant l'intensité de l'ensoleillement.

La variation journalière moyenne obtenue par régime d'Ouest-Nord-Ouest sur les 3 mois de mesure donne des taux moyens de formation de $5 \cdot 10^3$ particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ la nuit et $2,3 \cdot 10^4$ particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ le jour.

Le calcul n'a pas été fait par régime de Sud-Est car dans ces cas il est très difficile d'évaluer le temps de séjour de la masse d'air sur le continent.

Ces valeurs moyennes sont comparables à celles trouvées précédemment. Il faut cependant souligner que le taux de formation calculé par cette dernière méthode correspond à une formation moyenne pour le trajet de la masse d'air sur le continent. On note que ces valeurs sont en accord avec celles obtenues dans les chapitres précédents.

REMARQUE : On peut noter en comparant les tableaux 12 et 13 que les valeurs pour les différents cas envisagés sont d'autant mieux en accord qu'ils correspondent à des périodes de beau temps, ce qui est une hypothèse de la deuxième méthode de calcul.

Date	$(\tau)_j$	$(\tau)_n$	Remarque
13/04/71	$3,4 \cdot 10^4$	$6,7 \cdot 10^3$	Journée avec ensoleillement continu
14/04/71	$5 \cdot 10^4$	$3,5 \cdot 10^3$	Apparition du soleil : 14 h T.U.
13/06/71	$4,8 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^3$	Journée avec ensoleillement continu
15/06/71	$3,4 \cdot 10^4$	$6,7 \cdot 10^3$	Journée avec ensoleillement continu
21/06/71	$3 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^3$	Journée avec ensoleillement continu
22/06/71	$4,8 \cdot 10^4$	$8,2 \cdot 10^3$	Journée avec ensoleillement continu
23/06/71	$3,6 \cdot 10^4$	10^4	Apparition du soleil : 10 h T.U.
Valeurs moyennes	$2,3 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^3$	Les valeurs moyennes correspondent aux moyennes arithmétiques obtenues par régime d'Ouest-Nord-Ouest sur les 3 mois de mesure

TABLEAU 13 : Evaluation des taux de formation de noyaux d'Aitken (particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$) par régime d'Ouest-Nord-Ouest (formation continentale moyenne).

V. CARACTERISATION PHYSIQUE DES NOYAUX : DIMENSION MOYENNE - FRACTION DE PARTICULES ELECTRIQUEMENT CHARGÉES

V.1 Etude de la dimension moyenne des noyaux d'Aitken

La "granulométrie moyenne" des noyaux d'Aitken a été mesurée en continue sur l'ensemble des 3 mois de mesure. Les principaux résultats obtenus sont donnés dans le tableau 14.

rayon moyen (Rm)	km diurne	km nocturne	Rm vent S.E.	
3,2.10 ⁻⁶ cm	1,5.10 ⁻⁶ cm	1,8.10 ⁻⁶ cm	1,1.10 ⁻⁶ cm	

TABLEAU 14 : Variation du rayon moyen des noyaux d'Aitken.

La figure 48 présente la variation moyenne journalière du "rayon moyen" de l'aérosol atmosphérique et de l'humidité relative.

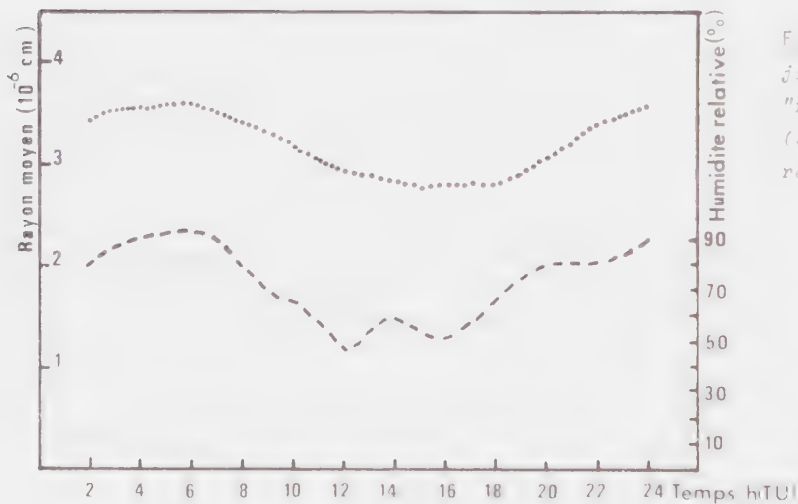


FIGURE 48 : Variation journalière moyenne du "rayon moyen" des noyaux (....) et de l'humidité relative (---)

Le rayon moyen sur l'ensemble de la campagne de mesure est de l'ordre de $3,2.10^{-6}$ cm. On constate une différence entre les dimensions moyennes mesurées le jour et la nuit, la valeur nocturne étant plus élevée (30 %). On peut remarquer par ailleurs, que les variations de taille suivent, relativement bien, celles de l'humidité relative dont la valeur moyenne est de 60 % le jour et 90 % la nuit.

Nous avons discuté dans le paragraphe IV, les mécanismes de grossissement des noyaux, en partant de l'hypothèse d'une génération sous forme de particules primaires dont les dimensions seraient de quelques dizaines d'Å. Les résultats expérimentaux ne montrent pas de variations importantes de la granulométrie moyenne avec l'augmentation matinale de l'intensité volumique de la source (ceci apparaît plus nettement sur des cas particuliers que dans les courbes moyennes : figure 49 à titre d'exemple). Dans l'hypothèse d'une génération de particules sous forme embryonnaire et évoluant

uniquement par suite des mécanismes de coagulation, nous devrions voir apparaître pendant le régime transitoire une diminution du rayon moyen (WALTER, 1973), la durée de ce régime transitoire étant dans tous les cas bien supérieure à la constante de temps de la mesure étant données les concentrations mesurées. On peut donc penser que les mécanismes de coagulation ne sont pas les seuls responsables du grossissement des noyaux. HUSAR (1972) a montré que les phénomènes de condensation peuvent jouer un rôle important. Nos mesures sont en accord, dans la mesure où on suppose une génération embryonnaire dont le grossissement ne peut s'interpréter d'après nos résultats avec la seule coagulation (§. IV).

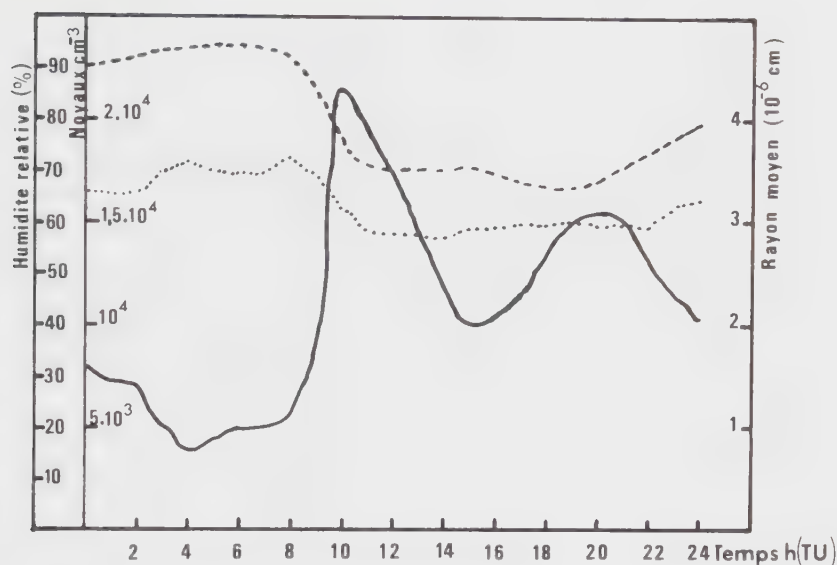


FIGURE 49
Journée du 14.06.71
Variation en fonction
du temps :
(—) des concentra-
tions en noyaux
(...) du "rayon moyen"
des noyaux
(---) de l'humidité
relative.

Reste le cas d'une production simultanée de grosses et de petites particules qui se traduirait par une faible variation du rayon moyen. Les valeurs d'intensité de la source que nous avons déterminées dans le paragraphe précédent pourraient dans ce cas être sous-estimées. En effet, nous avons considéré que la constante de disparition des noyaux était proportionnelle à $10^{-9} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ (constante de coagulation pour des particules de rayon $3 \cdot 10^{-6} \text{cm}$), cette valeur devient plus importante dans le cas d'un mélange de fines et de grosses particules ($5 \cdot 10^{-8} \text{cm}^3 \text{s}^{-1}$ pour des particules de rayon 10^{-7} et $3 \cdot 10^{-6} \text{cm}$). Nos mesures dans cette dernière hypothèse ne seraient représentatives que de la génération de grosses particules.

La détermination du spectre granulométrique est nécessaire pour lever l'incertitude. Etant données les gammes de dimensions considérées, ces mesures sont délicates. Les résultats obtenus jusqu'à présent par les différents auteurs ne présentent pas une précision suffisante pour apporter une solution à ce problème.

V.2 - Etude de la fraction de particules chargées

Soient N^+ et N^- , les concentrations en gros ions positifs et négatifs ; j'ai mesuré la concentration en gros ions positifs N^+ . Si l'on suppose $N^+ = N^-$, ce qui est vrai en première approximation dans les basses couches de l'atmosphère (BRICARD, 1965 a), le rapport $N^+ + N^-/N$ est pratiquement constant en fonction du temps et est compris entre 0,40 et 0,50. Ces valeurs sont en accord avec celles données par NOLAN et DOHERTY (1950) et correspondent en général avec celles prévues par la loi de Boltzmann (KEFFE, 1959) pour un rayon moyen des particules de 3.10^{-6} cm (figure 53, chapitre V).

VI. CONCLUSION

Les mesures que j'ai effectuées en zone rurale mettent en évidence que les variations diurnes de la concentration en noyaux d'Aitken observées dans l'air près du sol sont comparables à celles données par les différents auteurs. Elles s'expliquent à la fois par les variations diurnes du mélange vertical dans les basses couches de l'atmosphère et par les variations de l'intensité de la source qui augmente pendant la journée avec l'existence de réactions photolytiques.

La création de noyaux est continue et existe la nuit, même en l'absence de lumière solaire. Les taux de formation évalués avec deux méthodes différentes donnent des valeurs comprises entre 10^3 et 6.10^3 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ la nuit, et entre 10^4 et 2.10^5 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ le jour, suivant l'intensité du rayonnement solaire. Ces valeurs sont en accord avec celles que j'ai obtenues précédemment.

Il faut remarquer que ces taux de formation ont été évalués moyennant certaines hypothèses en ce qui concerne le grossissement des particules dans le cas d'une génération embryonnaire, qui correspondent à nos résultats expérimentaux et qu'une analyse fine du spectre granulométrique devrait permettre de confirmer.

La dimension moyenne des noyaux est $3,2.10^{-6}$ cm avec une valeur nocturne supérieure (30%) à la valeur diurne. La fraction des particules chargées est comparable à celle prévue par la loi de Boltzmann, à savoir que 40 à 50 % des noyaux d'Aitken existent dans l'atmosphère en zone rurale sous forme de gros ions.

CHAPITRE V

INFLUENCE DE LA CONCENTRATION EN NOYAUX D'AITKEN SUR CELLE DES PETITS IONS. APPLICATION À LA MESURE DE LA GRANULOMÉTRIE MOYENNE DES NOYAUX (1)

La pollution particulaire et plus précisément la concentration et la granulométrie des aérosols ont une influence sur les paramètres électriques de l'air en particulier sur la teneur en petits ions.

J'ai déterminé dans le chapitre précédent, lors de mesures effectuées au niveau du sol en zone rurale un rayon moyen diurne des particules de $2,8 \cdot 10^{-6}$ cm. Il est probable que cette dimension moyenne des particules varie en fonction de l'altitude par suite des phénomènes de coagulation et des variations d'humidité. Cela doit se traduire par une variation de la concentration en petits ions.

Je présente dans ce chapitre, une étude comparative des répartitions verticales de noyaux d'Aitken, de petits ions et de radon qui appuyée par une étude théorique que je rappelle brièvement permet de déduire la dimension moyenne des particules en fonction de l'altitude.

Comme je l'ai déjà mentionné, j'utilise les résultats de cette étude dans le chapitre I (§.I), pour la détermination de l'intensité des sources de noyaux d'Aitken, en particulier pour déterminer la répartition spatiale des concentrations en particules à l'intérieur d'un panache.

I. GÉNÉRALITÉS SUR LES PETITS IONS

Les petits ions de l'atmosphère sont créés principalement :

- par les gaz radioactifs : radon, thoron et leur dépôt actif ;
- par les substances radioactives contenues dans l'écorce terrestre ;
- par les rayonnements cosmiques.

L'influence respective de ces trois principaux agents ionisants est fonction de l'altitude (figure 50).

Les radiations ionisantes provenant du sol ne se font sentir que dans les premiers 100 mètres (ISRAEL, 1957) comme on peut le voir sur la courbe 1 de la figure 50. L'influence du radon est prépondérante dans les basses couches, tout au moins au-dessus d'un site continental. La courbe 2 de la figure 50 représente l'ionisation correspondant au profil moyen de radon que nous avons obtenu lors des expériences que je décris plus loin.

En altitude, le rayonnement cosmique devient rapidement le principal agent ionisant. Son intensité est fonction de l'altitude et de la latitude du point

(1) L'essentiel de cette étude a fait l'objet d'une publication dans le "Journal of Applied Meteorology" (GUEDALIA D., LOPEZ A., FONTAN J., BIROT A., 1972).

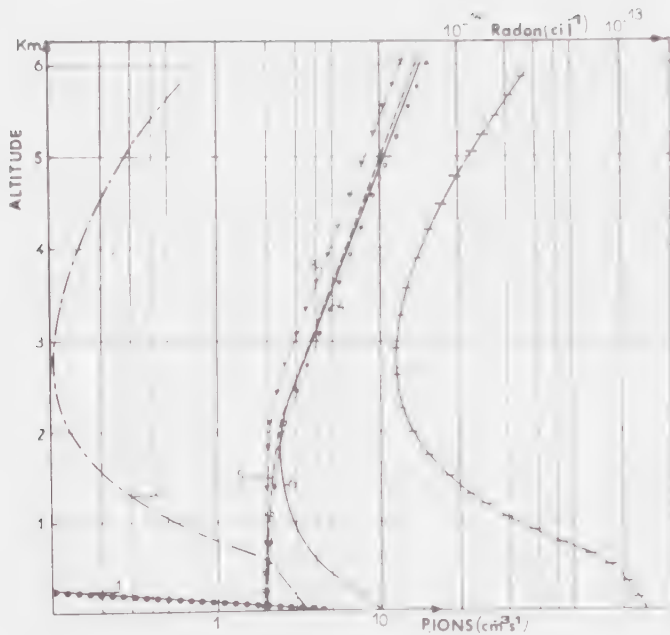


FIGURE 50 : Influence des différents agents ionisants.

1. Ionisation due au sol
2. Ionisation due à la répartition du radon donnée par la courbe 7
3. Ionisation due au rayonnement cosmique à 38°N (Millikan, 1942).
4. Ionisation due au rayonnement cosmique à 53°N (Millikan, 1942).
5. Ionisation due au rayonnement cosmique en altitude pour la latitude de 45°N.
6. Ionisation totale
7. Répartition verticale du radon dans l'atmosphère.

de mesure. La figure 50 donne les profils d'ionisation dus au rayonnement cosmique mesurés aux latitudes de 38°N et 53°N (Millikan et alii, 1942) et celui que j'ai adopté pour la latitude de 45°N correspondant à la zone de mesure. Lors de leur création, les petits ions ont des mobilités de l'ordre de $2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ v}^{-1}$. Des molécules d'eau s'agglomèrent autour de ces ions, la mobilité étant alors comprise entre 2 et $0,4 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ v}^{-1}$ (HUERTAS, 1972 ; BRICARD, 1972b). La mobilité des ions négatifs est plus grande que celle des ions positifs ; le rapport k^-/k^+ est en moyenne de 1,25.

Les petits ions disparaissent soit par recombinaison avec ceux de signe opposé, soit par fixation sur des noyaux électriquement neutres ou chargés. Le temps de vie des petits ions est fonction ainsi de la pollution de l'air et de l'intensité d'ionisation. Il peut s'étendre de quelques secondes à quelques minutes suivant les zones de mesure. Ainsi au niveau du sol, dans le cas d'une pollution importante, c'est-à-dire en présence de $50\,000 \text{ particules/cm}^3$, le temps de vie des petits ions est voisin de 30 secondes. Il est de 150 secondes si le nombre de particules est de l'ordre de $10\,000 \text{ cm}^{-3}$. En altitude la fixation peut souvent être négligée devant la recombinaison. On peut alors admettre que le temps de vie des ions est de l'ordre de 400 secondes à 1500 mètres, 300 s à 3 000 m et 200 s à 5 000 m.

La conductivité de l'air est principalement due aux petits ions.

II. RELATIONS THEORIQUES ENTRE LE NOMBRE DE PETITS IONS, L'INTENSITE D'IONISATION ET LE NOMBRE DE NOYAUX D'AITKEN DANS L'ATMOSPHERE

II.1 - Equation d'évolution des petits ions

Les équations d'évolution des petits ions s'écrivent à l'équilibre (BRICARD, 1965 a) :

$$\frac{\partial n^+}{\partial t} = 0 = q - \alpha n^+ n^- - n^+ (\beta_+^- N^- + \beta_+^0 N^0) \quad (28)$$

$$\frac{\partial n^-}{\partial t} = 0 = q - \alpha n^+ n^- - n^- (\beta_-^+ N^+ + \beta_-^0 N^0) \quad (29)$$

q : intensité d'ionisation

n^+ et n^- : concentrations respectives en petits ions positifs et négatifs

N^+ , N^- et N^0 : concentrations respectives en gros ions positifs, négatifs et en particules neutres

α : coefficient de recombinaison des petits ions

β_i^p : coefficient de fixation des petits ions de charge i sur des noyaux de charge p .
Ces coefficients ont été calculés par BRICARD (1965 a) et MONHEN (1966). Ils sont fonction de la granulométrie, c'est-à-dire du coefficient de diffusion des noyaux (figure 51).

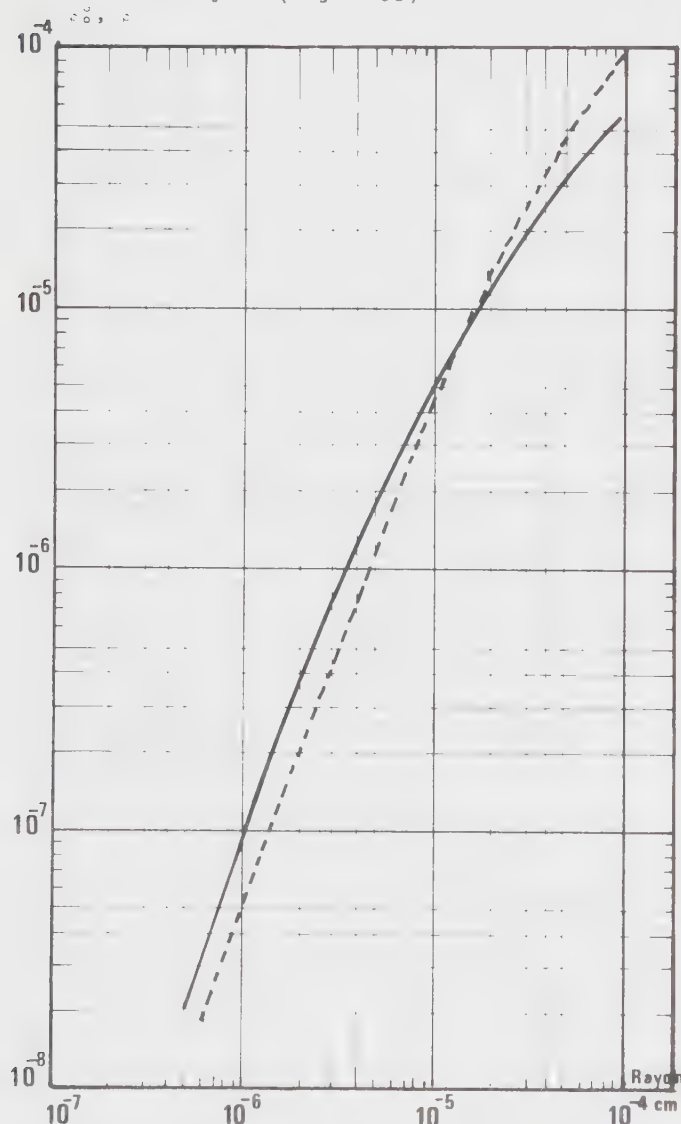


FIGURE 51 : Variation du coefficient de fixation β_i^p (---) et β (—) en fonction du rayon des particules (MONHEN, 1966). β représente le coefficient de fixation total des petits ions sur les noyaux.

$n^+/n^- = 1,25$ et $N^+ = N^-$, l'équation (29) devient :

$$q - 1,25 \alpha (n^-)^2 - n^- (\beta_+^+ N^+ + \beta_-^0 N^0) = 0$$

II.2 - Variation du rapport n^+/n^-

La résolution des équations (28) et (29) donne :

$$\frac{n^+}{n^-} = \frac{f_+^+}{f_-^+} \sqrt{\frac{N^+}{N^-}} = \frac{k^-}{k^+} \sqrt{\frac{N^+}{N^-}} = 1,25 \sqrt{\frac{N^+}{N^-}}$$

BRICARD (1965 b) a calculé en considérant une granulométrie moyenne de l'aérosol de $3 \cdot 10^{-6}$ cm, les variations de N^-/N^+ en fonction de Q/N^2 , caractéristique de la pollution et de l'ionisation. En effet : $Q = q - \alpha n^+ n^-$ et N est la concentration totale en noyaux.

Lorsque Q/N^2 est inférieur à 10^{-7} , ce que l'on rencontre généralement dans les basses couches, $N^-/N^+ = 1$, d'où :

$$\frac{n^+}{n^-} = 1,25$$

Lorsque Q/N^2 est supérieur à 10^{-5} , ce que l'on trouve en altitude, $N^-/N^+ = 1,56$, d'où :

$$\frac{n^+}{n^-} = 1$$

II.3 - Variation de la concentration en petits ions en fonction du nombre de noyaux et de l'intensité d'ionisation

A. DANS LES BASSES COUCHES

qui s'écrit encore :

$$q - 1,25 \alpha (n^-)^2 - n^- (\beta_+^+ / \beta_-^0 N^+ + N^0) \beta_-^0 = 0 \quad (30)$$

Ces relations donnent les concentrations en petits ions + et - en fonction du rapport β_+^+ / β_-^0 , du nombre de gros ions positifs N^+ et du nombre de particules neutres N^0 .

Le rapport β_+^+ / β_-^0 est fonction de la granulométrie des particules. La figure 52 donne la variation de β_+^+ / β_-^0 en fonction du rayon des particules (BRICARD, 1965 a).

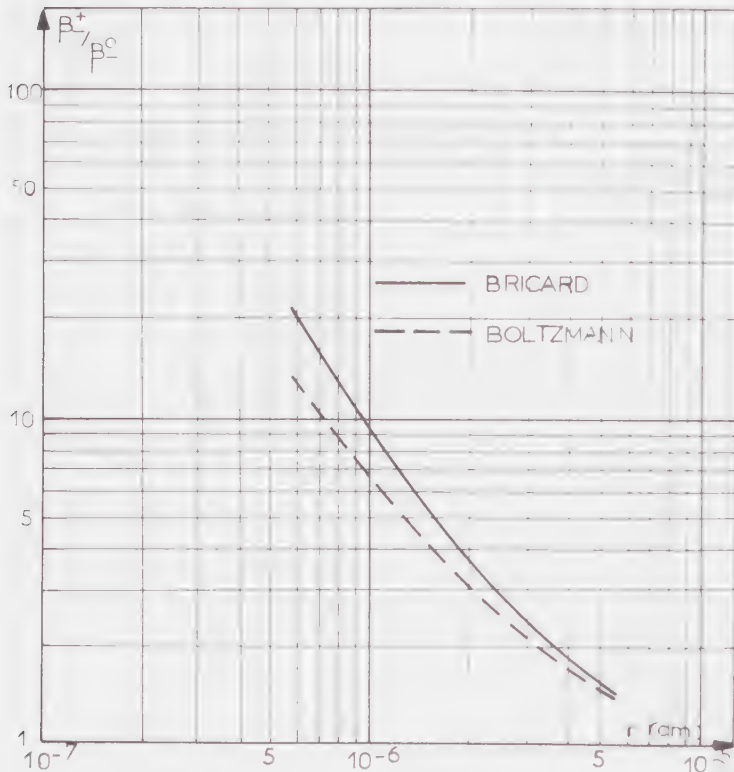


FIGURE 52 : Variation du rapport β_+^+ / β_-^0 en fonction du rayon des particules.

Les concentrations en noyaux positifs et neutres sont fonction aussi de la granulométrie de ces particules. En supposant que l'équilibre de BOLTZMANN est réalisé, KEEFE (1959) a calculé le pourcentage de noyaux neutres et le pourcentage de noyaux portant une, deux charges... (figure 53).

Ces relations donnent donc pour un aérosol de granulométrie donnée, le nombre de petits ions en fonction du nombre total de particules et de l'intensité d'ionisation.

Pour un rayon moyen de $3 \cdot 10^{-6}$ cm, valeur moyenne de la dimension des aérosols déterminée dans le chapitre précédent au niveau du sol, la concentration en petits ions négatifs déduite de l'équation (30) s'exprime par la relation:

$$n^- = \frac{-\beta_-^0 N + (\beta_-^0)^2 N^2 + 5 \alpha q}{2,5 \alpha} \quad (31)$$

N : totalité des noyaux d'Aitken.

Inversement, l'équation 30 permet, connaissant la concentration en petits ions, en radon et en noyaux d'Aitken, d'avoir la valeur de β_-^0 correspondant aux noyaux d'Aitken, d'où leur granulométrie moyenne. Pour cela on admettra en première approximation que $\beta_-^+ = \beta_-^0$ (coefficient de fixation de particules ultra-fines neutres sur des noyaux neutres).

$$\beta_-^0 = \frac{q - 1,25 \alpha (n^-)^2}{n^- - \frac{1}{2} N^+ + N^0} \quad (32)$$

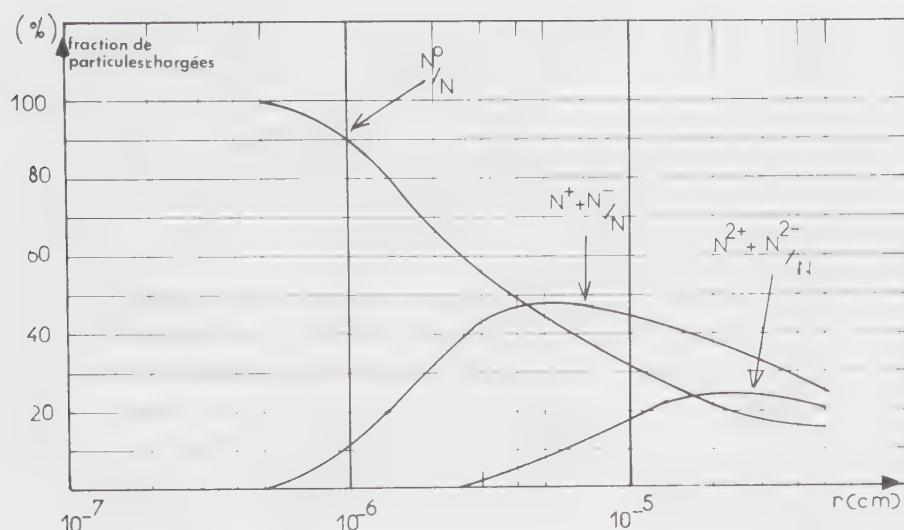


FIGURE 53 : Pourcentage des particules chargées en supposant l'équilibre de Boltzmann réalisé (KEEFE et al., 1959).

Cette équation se résout aisément par approximations successives en prenant une valeur initiale de β_+^0/β_-^0 quelconque.

REMARQUE : Lorsque la concentration en noyaux est supérieure à 10 000 particules cm^{-3} ce qui est en général le cas dans les basses couches de l'atmosphère, la recombinaison des petits ions est négligeable devant leur fixation sur les noyaux. Dans ces conditions, l'expression (31) s'écrit sous la forme simplifiée :

$$n^- = \frac{q}{\beta_-^0 N} \quad (33)$$

La concentration en petits ions est donc inversement proportionnelle à la teneur en noyaux. La constante de proportionnalité est fonction de l'intensité d'ionisation et de la granulométrie des particules.

B. EN ALTITUDE

La fixation des petits ions peut être négligée devant la recombinaison. Dans ce cas :

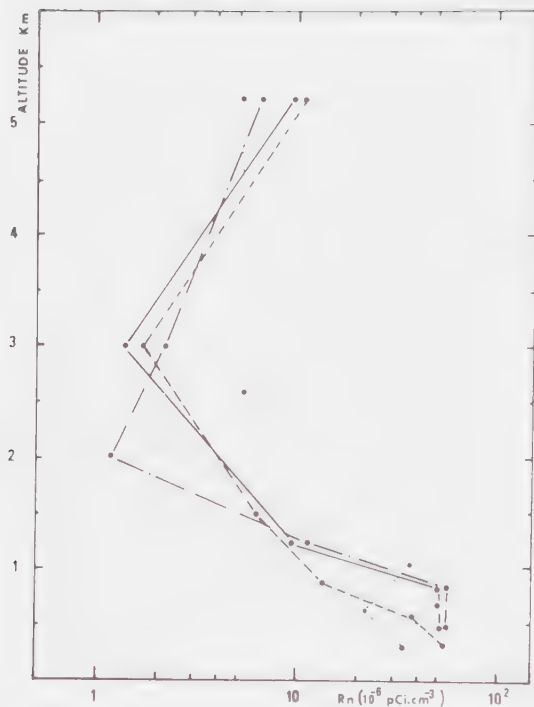
$$n^+ = n^- = \sqrt{\frac{q}{\alpha}}$$

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Je présente sur la figure 54, les résultats d'une campagne de mesure durant laquelle ont été enregistrées les répartitions verticales de radon (courbe a), de noyaux (courbe b) et de petits ions (courbe c).

En ce qui concerne les noyaux d'Aitken, on observe chaque jour, comme il a déjà été mentionné (chapitre III, §.III) une diminution des concentrations au niveau supérieur de la couche limite planétaire. Dans le cas des petits ions cette disparition de noyaux correspond à une augmentation.

La variation au passage de la couche limite est moins prononcée que pour les noyaux en raison des sources différentes d'ionisation (le sol, les cosmiques,



la radioactivité atmosphérique). Les mêmes courbes de variation ont été obtenues par SAGALYN et FAUCHER (1954) qui ont effectué des mesures de conductivité de l'air au-dessus du New England, aux Etats-Unis. Ces auteurs ont attribué l'augmentation brutale de conductivité aux conditions de diffusivité différente existant de part et d'autre du niveau supérieur de la couche limite. Dans les conditions correspondant à mes mesures, je pense que les variations rapides que j'obtiens sont dues à la fois à la couche stable qui surmonte la couche limite dans chacune des expériences, mais aussi au fait que l'air supérieur est d'origine océanique et qu'il est ainsi peu chargé en noyaux.

FIGURE 54-a : Répartitions verticales des concentrations en radon le 10/07/70.

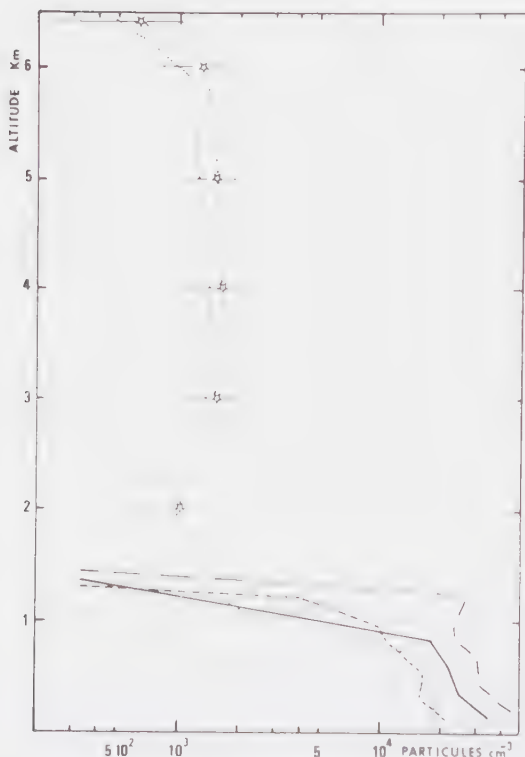


FIGURE 54-b : Répartitions verticales des concentrations en noyaux mesurées le 10/07/70. (—) : 5/07/70 ; (---) : 6/07/70 ; (— · —) : 10/07/70 ; (----) : 11/07/70 ; (---☆---) : profil du 10/07/70 en prenant en considération la sous estimation de pression

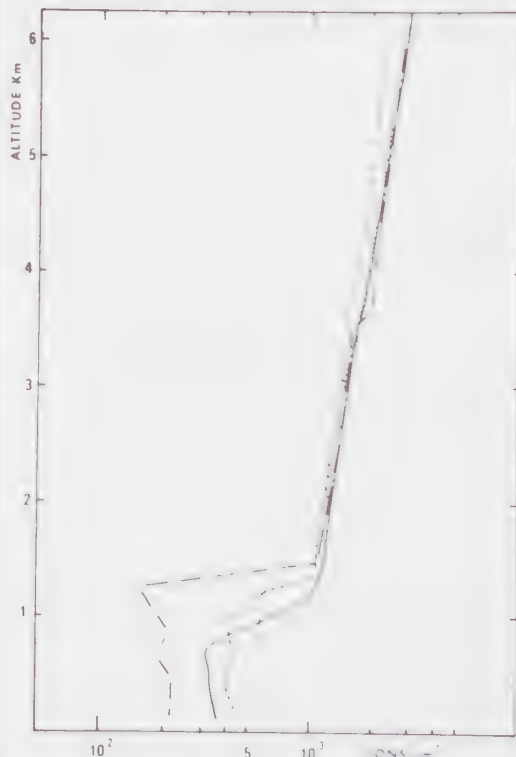


FIGURE 54-c : Répartitions verticales des petits ions mesurées le 10/07/70. (—) : 6/07/70 ; (---) : 10/07/70 ; (--- · ---) : 11/07/70.

Le rapport n^+/n^- du nombre de petits ions positifs au nombre de petits ions négatifs est donné par la figure 55.



FIGURE 55 : Variation en fonction de l'altitude du rapport n^+/n^- mesuré le :
(—) : 5/07/70 ; (—) : 6/07/70 ;
(.....) : 10/07/70 ; (----) : 11/07/70.

Les 5, 6 et 11, j'obtiens une valeur moyenne de 1,2 à l'intérieur de la couche limite et une valeur de 1 au-dessus. Ceci est en bon accord avec les valeurs théoriques auxquelles on doit s'attendre.

Le 10, par contre, n^+/n^- est pratiquement égal à l'unité quelque soit l'altitude.

Ce résultat peut être dû à une granulométrie différente en fonction de l'altitude ; on note, en effet, la présence d'une zone nuageuse vers 1 000 mètres.

En utilisant la relation (32), et les profils expérimentaux des petits ions, des noyaux d'Aitken et du radon, j'ai calculé la valeur du rayon moyen des noyaux d'Aitken (figure 56). Les 6 et 11, j'obtiens une dimension très voisine et pratiquement constante avec l'altitude correspondant à un rayon moyen de l'ordre de $3,5 \cdot 10^{-6}$ cm.

Le profil obtenu le 10 est différent. Le rayon moyen au niveau du sol est le même que celui observé les autres jours et décroît jusqu'à 400 mètres. Au-dessus, jusqu'à 900 mètres, la granulométrie des noyaux est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-6}$ cm. Il semble donc que l'on ait une zone où les noyaux soient de dimension plus petite.

Au-dessus, on constate une brusque augmentation du rayon moyen qui passe de $2 \cdot 10^{-6}$ cm à $6 \cdot 10^{-6}$ cm. Cette augmentation

correspond à la zone nuageuse dont j'ai signalé la présence précédemment.

Dans le cas de la figure 57, profil effectué le 9/09/72, à 10 h, on note au-dessus du sol et sur 450 mètres une accumulation de noyaux dans une couche stable, liée à la présence d'une inversion de température au niveau supérieur. La teneur en radon n'a pas été mesurée simultanément, mais cependant, il est vraisemblable que l'on ait une accumulation dans cette couche. Au niveau 450 mètres, on note une diminution d'un facteur 4 de la teneur en noyaux, tandis que la concentration en petits ions reste constante. Cela s'explique par une diminution à ce niveau de l'intensité d'ionisation qui compense l'augmentation du nombre de petits ions qui serait due à une teneur plus faible en noyaux. Dans la couche 400-2500 mètres la concentration en petits ions croît avec l'altitude, cela est dû à une augmentation de l'intensité d'ionisation. Les teneurs en petits ions sont cependant inférieures à celles observées sur les courbes précédentes, en raison principalement de leur fixation sur les noyaux en concentration plus importante. A 3000 m, la teneur en noyaux est inférieure au seuil de sensibilité de l'appareil de mesure ($300 \text{ particules cm}^{-3}$), le nombre de petits ions à ce niveau est sensiblement identique à celui observé lors des autres prélèvements.



FIGURE 56 : Variation calculée du rayon moyen des aérosols en fonction de l'altitude le :

(—) : 6/07/70

(...) : 10/07/70

(---) : 11/07/70

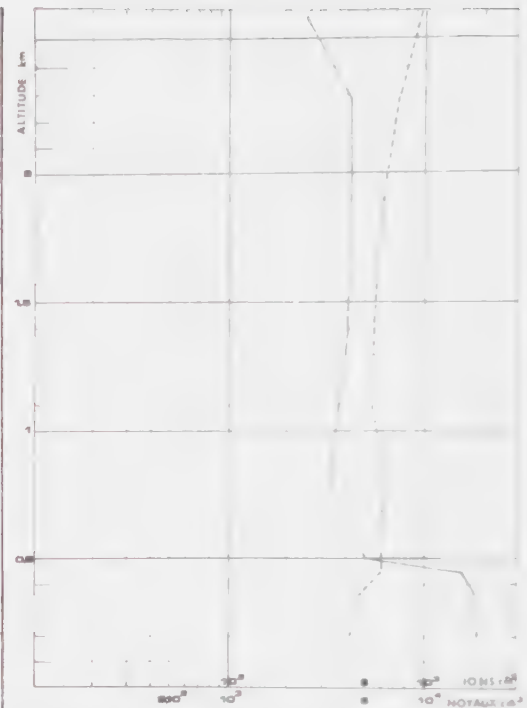


FIGURE 57 : Répartitions verticales des concentrations : (—) en noyaux et (---) petits ions positifs mesurés le 6/07/70.

IV - CONCLUSION

Les mesures simultanées des profils de concentration en radon, noyaux d'Aitken et petits ions ont permis de vérifier les lois d'évolution dans l'atmosphère de ces derniers en fonction de l'intensité d'ionisation et des caractéristiques de la pollution particulaire (concentration, granulométrie).

Les teneurs en petits ions, mesurées à une altitude déterminée, sur des intervalles de temps et d'espace relativement courts (pour que puisse être supposée constante l'intensité d'ionisation) sont caractéristiques de la pollution particulaire. Ainsi, lorsque la concentration en noyaux est supérieure à $10\,000$ particules/cm³, ce qui est en général le cas durant la journée dans la couche limite planétaire, on montre en supposant constante la granulométrie des particules que la teneur en petits ions (n) est inversement proportionnelle à la concentration en aérosols.

a : constante fonction de l'intensité d'ionisation et de la granulométrie des particules

N : concentration en particules

Comme les noyaux d'Aitken, les petits ions s'avèrent par conséquent un indice de pollution. Leur mesure présente l'avantage d'une constante de temps faible (de l'ordre de la seconde), ce qui est comme je l'ai déjà signalé dans le premier chapitre intéressant pour la détermination spatiale des concentrations en particules dans un panache.

En ce qui concerne la répartition verticale des concentrations en petits ions dans l'atmosphère, on observe en général dans la journée une augmentation au niveau supérieur de la couche de mélange. Cette augmentation correspond à la diminution des concentrations en noyaux d'Aitken que l'on observe en général à ce niveau.

On note cependant des variations moins importantes pour les petits ions en raison des sources différentes d'ionisation en fonction de l'altitude.

Ces profils verticaux de petits ions peuvent être comparés à ceux obtenus par différents auteurs (SAGALYN, 1954 ; KRAAKEVICK, 1958). Je pense cependant que les variations observées dans nos résultats sont accentuées par la situation géographique de la zone de prélèvement qui est très souvent alimentée au-dessus de la couche de mélange par de l'air d'origine océanique, c'est-à-dire faiblement chargé en noyaux.

J'ai déterminé par ailleurs, à partir des mesures simultanées des profils de concentrations en noyaux, petits ions et radon, la dimension moyenne des particules en fonction de l'altitude. On note en général par période de beau temps, c'est-à-dire en l'absence de nuages une répartition verticale de la granulométrie moyenne sensiblement constante de l'ordre de $3,5 \cdot 10^{-6}$ cm. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celle que j'avais mesurée au niveau du sol. Au niveau d'une zone nuageuse discontinue, on observe par contre une augmentation de la taille moyenne des particules ($6 \cdot 10^{-6}$ cm comparé à $3,5 \cdot 10^{-6}$ cm).

-- --

--

C O N C L U S I O N

Les mesures que j'ai effectuées en zone rurale peu polluée m'ont permis de faire la part sur les variations de concentration en noyaux observées au niveau du sol des variations diurnes du mélange vertical dans les basses couches de l'atmosphère et des variations de l'intensité de la source qui augmente pendant la journée, en moyenne d'un facteur 6, avec l'existence des réactions photolytiques (3.10^4 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ le jour comparé à 5.10^3 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ la nuit).

Cette source, mise en évidence au niveau du sol en zone rurale peu polluée est négligeable en altitude au-dessus de la couche de mélange. Ce dernier point appelle quant à la formation des noyaux deux hypothèses complémentaires :

- soit que les gaz participant aux réactions photolytiques ont une durée de vie courte (très inférieure à la période radioactive du radon : 3,8 jours) ;

- soit que les réactions de transformation gaz-solide sont lentes en l'absence d'un catalyseur en concentration suffisante.

Pour étudier le devenir de ces aérosols dans l'atmosphère, j'ai montré l'intérêt d'utiliser des traceurs radioactifs naturels, radon et ^{212}Pb . Ces éléments d'origine continentale, ayant leur source uniformément répartie au sol permettent de s'affranchir dans les mesures de répartition verticale des noyaux d'Aitken des conditions de diffusivité liées aux paramètres météorologiques. Ainsi, la comparaison des profils verticaux de noyaux d'Aitken, radon et ^{212}Pb , a permis de mettre en évidence au-dessus des zones rurales de la région étudiée une source de noyaux d'Aitken relativement bien répartie à la surface du sol. Cette homogénéisation des sources est cependant plus faible que celle des éléments radioactifs utilisés comme traceurs. Ce dernier point semble dû à la présence de sources localisées artificielles et naturelles (zone urbaine, industrielle, forestière) qui participent intensément à la formation de noyaux.

Dans certaines conditions expérimentales, il a pu être mis en évidence une période apparente de disparition des noyaux dans l'atmosphère de l'ordre de 12 h. Dans les basses couches de l'atmosphère (couche limite planétaire) cette valeur correspond sensiblement aux phénomènes de coagulation. En altitude, la disparition doit être liée aux phénomènes de lessivage par les nuages.

Afin de déterminer, à l'échelle de la région, un bilan des différentes sources de noyaux d'Aitken, j'ai développé à l'aide de mesures aériennes différentes méthodes de détermination de leur intensité. Chacune de ces méthodes est caractéristique d'un type géométrique de source :

- celles quasi-ponctuelles ; ce sont en général les agglomérations et les complexes industriels. Je détermine dans ce cas le flux de particules qui passe dans une section droite du panache en mesurant la répartition spatiale de leur concentration dans la zone polluée. Cette mesure peut se faire soit à l'aide du compteur de noyaux qui a été réalisé, soit au moyen d'une méthode indirecte mesurant la teneur en petits ions. Cette dernière méthode qui présente l'avantage d'une constante de temps de l'ordre de la seconde permet d'obtenir une bonne résolution dans la répartition spatiale des concentrations en noyaux dans la zone polluée.

- sources étendues regroupant en général les zones rurales et forestières. On mesure dans ce cas l'évolution de la répartition verticale de la concentration en noyaux en fonction du temps ou de la distance parcourue au-dessus de la source par la masse d'air analysée.

Les régions Midi-Pyrénées et Aquitaine, dans lesquelles ont été effectuées nos mesures ont une superficie de $87\,000\text{ km}^2$ et une population de 4 millions d'habitants. Elles présentent des sources de noyaux diverses et bien localisées (agglomérations, complexes industriels, sources naturelles).

Les intensités de quelques-unes de ces principales sources ont été déterminées à l'aide des méthodes exposées ci-dessus.

Ces résultats permettent de faire un premier bilan et d'estimer l'importance relative des sources naturelles et artificielles à l'échelle de cette région.

L'agglomération de Toulouse, 400 000 habitants, génère en moyenne avec son environnement industriel 5.10^{17} particules s^{-1} . Cette valeur correspond à une émission de $1,25.10^{12}$ particules s^{-1} habitant $^{-1}$, soit, pour l'ensemble des régions considérées, 5.10^{18} particules s^{-1} , si l'on considère que l'environnement industriel de l'agglomération toulousaine est représentatif de celui des régions étudiées.

Les études effectuées au sol et en altitude dans des zones rurales donnent un taux de formation moyen diurne de noyaux de $3\,10^4$ particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, soit pour l'ensemble de la région $2,6.10^{19}$ particules s^{-1} .

La comparaison des chiffres précédents montre que 25% des noyaux sont d'origine artificielle et 75% d'origine naturelle. Ces valeurs qui ne constituent qu'un ordre de grandeur pourront être précisées par des mesures complémentaires suivant les méthodes que nous avons précédemment exposées accompagnées de celles du spectre granulométrique des particules.

En effet la détermination du taux de formation de noyaux à partir de mesures de concentrations implique la connaissance d'une part des échanges verticaux de matière dans les basses couches de l'atmosphère, d'autre part de l'intensité des phénomènes de disparition dues principalement à la coagulation. Le premier point est obtenu soit à l'aide de mesure aérienne, soit par l'utilisation de traceurs radioactifs naturels. Le deuxième point est lié aux dimensions des particules.

Nous avons admis dans ce travail, à partir des mesures de concentrations et de dimension moyenne, que le coefficient de coagulation des particules était indépendant du temps. Ceci implique des hypothèses quant à la génération des particules et à leur grossissement que confirment nos résultats, en zone rurale, à savoir que dans le cas d'une génération embryonnaire de quelques 10^{-7} cm de rayon, l'influence des phénomènes de coagulation n'est pas prépondérante dans leur évolution dimensionnelle. La connaissance du spectre granulométrique devrait permettre de préciser ces différents points. Ces mesures sont délicates étant donné la gamme de dimensions considérée ; elles font appel à des techniques dont l'application aux noyaux d'Aitken est plus ou moins aléatoire (microscopie électronique par exemple).

La forêt des Landes, avec un couvert végétal composé essentiellement de résineux, est une source naturelle importante couvrant $7\,000\text{ km}^2$. L'intensité de la source mesurée aux mois de mai et juin est de l'ordre de 10^5 particules $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, soit pour l'ensemble de cette zone 7.10^{18} particules s^{-1} . Si l'on considère d'après WENT (1966) que ces noyaux résultent de réactions de photooxydation sur des constituants gazeux émanés de la végétation (α , β -pinène, myrcène, isoprène...) il est probable que des noyaux se formeront au-delà de la zone forestière. La distance sur laquelle l'influence de cette source se fait sentir doit dépendre du temps de vie de ces gaz dans l'atmosphère qui est en fait fort peu connu. On peut ainsi penser que la forêt des Landes qui génère, d'après les mesures effectuées au-dessus de la zone forestière, 25 % des noyaux des régions Midi-Pyrénées et Aquitaine, est en fait plus importante.

Parmi les sources industrielles, l'une des plus importantes est le complexe de Lacq, avec un flux à quelques kilomètres de la source de l'ordre de 10^{18} particules s^{-1} , soit environ 4 % de la quantité totale de noyaux générés par la région. Comme dans le cas précédent, cette valeur est par défaut, étant donné qu'il y a une production continue de noyaux dans la zone polluée (de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{12}$ particules $cm s^{-1}$ à proximité de la source). L'importance de cette production qui se situe en dehors de la zone industrielle dépendra des mécanismes de formation de ces noyaux et du temps de vie des gaz polluants participant à ces réactions.

Ce premier bilan pourra être complété, par une étude détaillée des différentes sources caractéristiques de la région et je pense en particulier au complexe industriel de Lacq et à la zone forestière des Landes. Les méthodes que j'ai mises au point dans ce travail devraient permettre de préciser pour chacune d'entre elles l'influence du rayonnement solaire sur les taux de formation de particules.

Des études simultanées avec des composants gazeux caractéristiques de ces 2 types de source (SO_2 pour Lacq, essences végétales pour les Landes) accompagnées de celles du spectre granulométrique des particules devraient permettre de mieux comprendre les mécanismes de formation des noyaux dans l'atmosphère.

-:- -:-

-:-

ANNEXE 1

TABLEAU 1 : Récapitulatif des différentes grandeurs caractéristiques des aérosols.

TABLEAU 2 : Subdivision du spectre des noyaux atmosphériques en fonction de leur taille, de leur origine et importance météorologique de ces particules.

TABLEAU: 1 CARACTÉRISTIQUES DES PARTICULES ET AÉROSOLS

		Diamètre des particules, en microns (μ)																	
		0.0001	0.001	0.01	0.1	1	10	100	1,000	10,000	100,000	1,000,000	10,000,000	100,000,000	1,000,000,000	10,000,000,000	100,000,000,000		
Dimensions Equivalentes																			
Rayonnements Electromagnétiques																			
Définition de Termes Techniques																			
Aérosols Atmosphériques Courants																			
Particules et Aérosols Remarquables																			
Méthodes d'Analyse de la Dimension des Particules																			
Installations de Nettoyage des Gaz																			
Vitesse Limite de Sédimentation* sous l'Effet de la Pesanteur [pour des sphères de densité 2.0]																			
Coefficient de Diffusion# des Particules en cm^2/sec																			

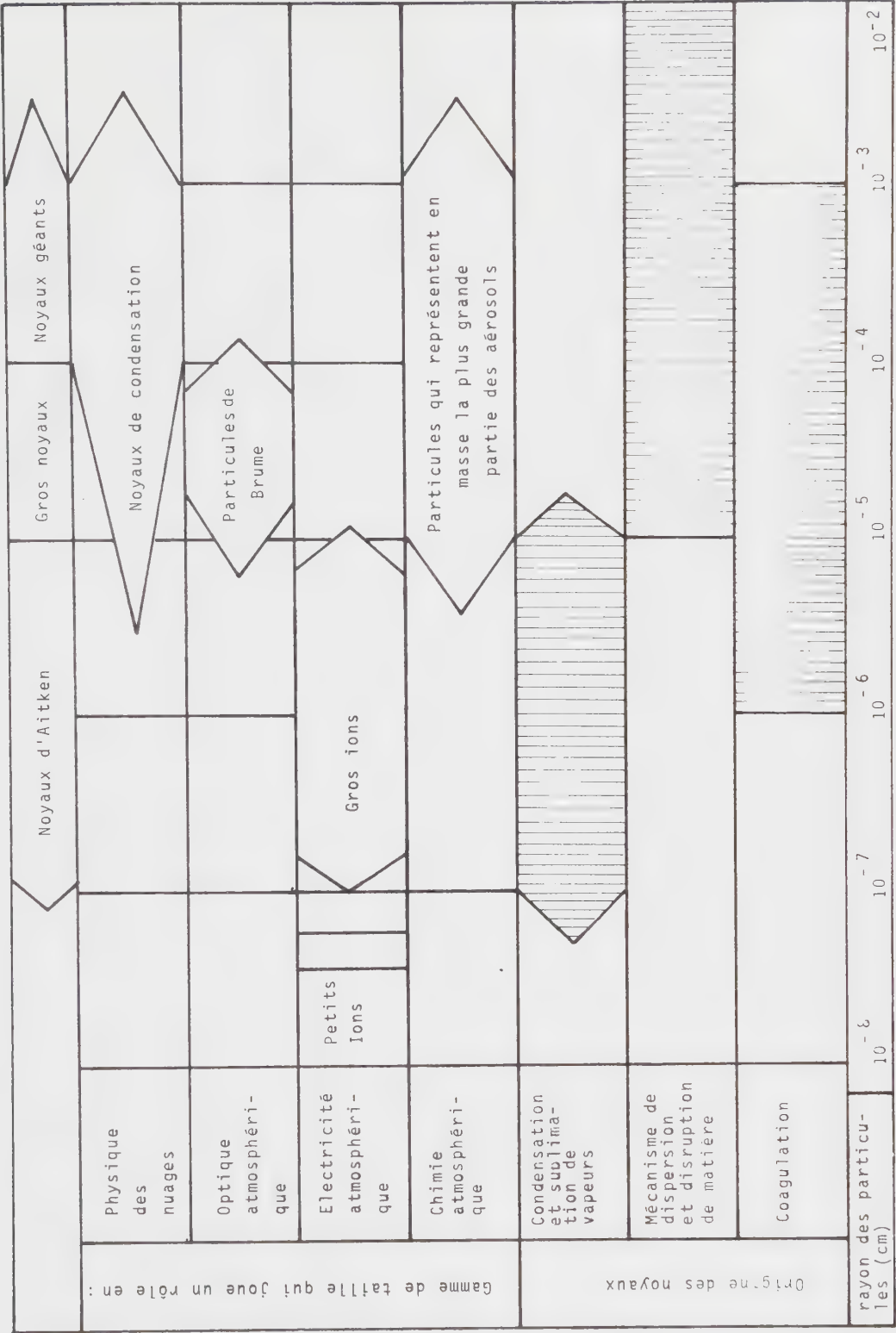


TABLEAU 2 : Subdivision du spectre des noyaux atmosphériques en fonction de leur taille, de leur origine et importance.

ANNEXE II

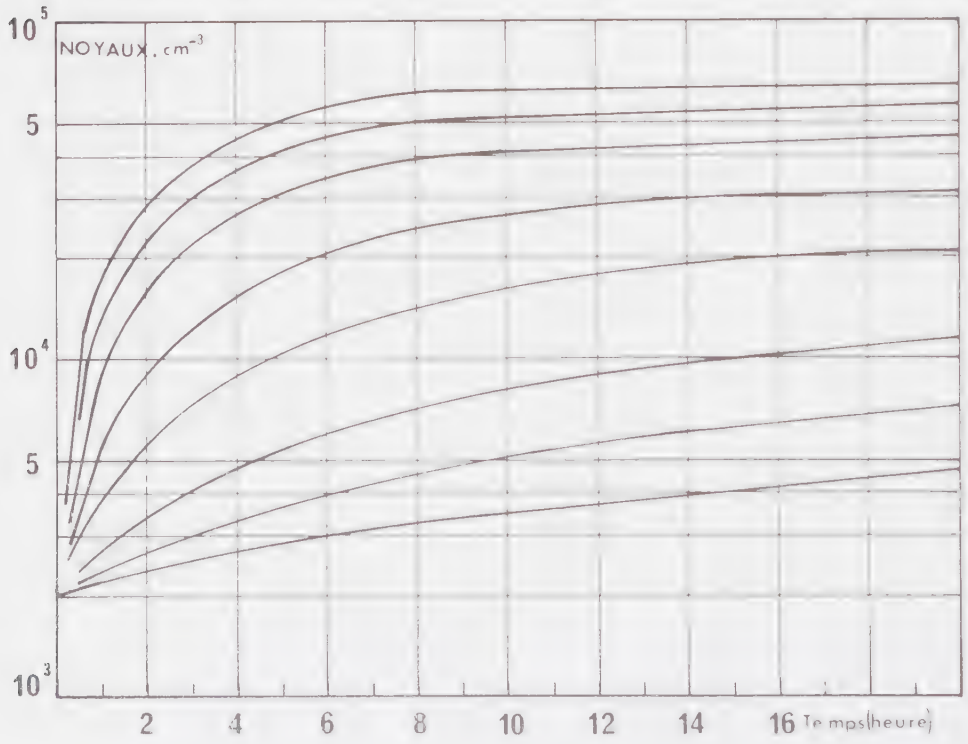
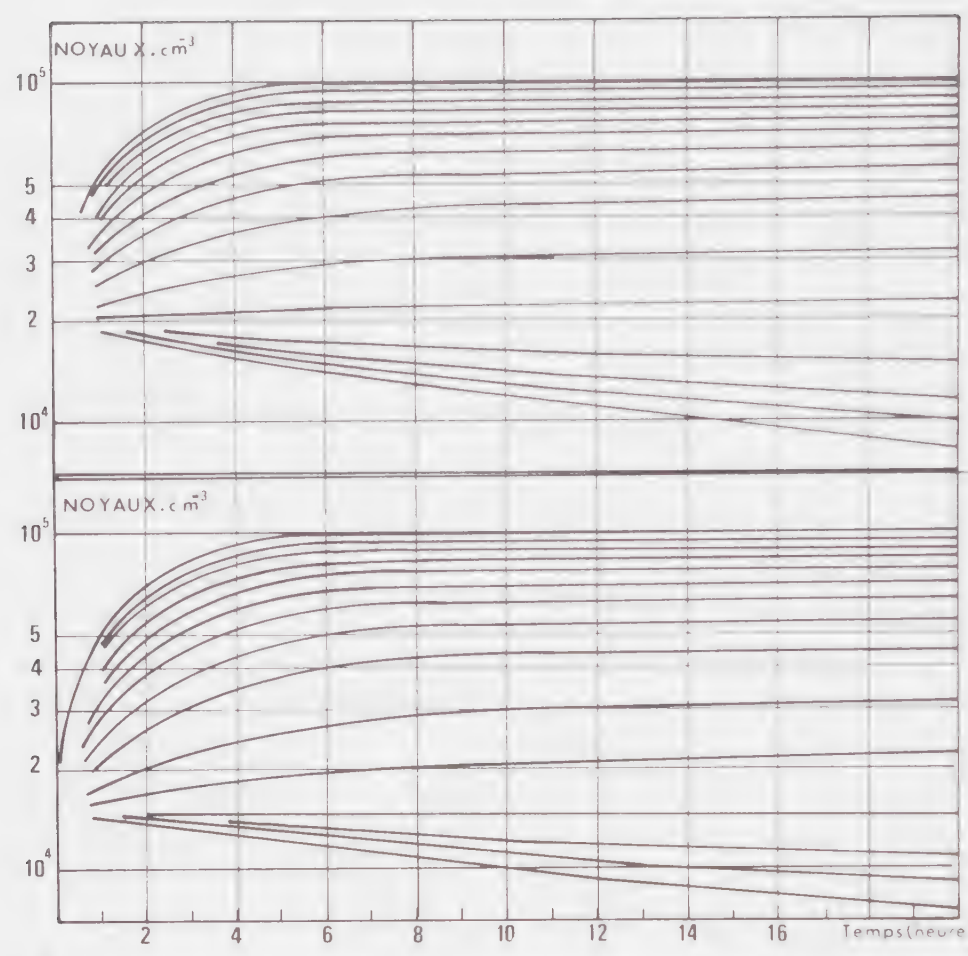
Evolution en fonction du temps des concentrations en radon et noyaux d'Aitken dans une colonne d'atmosphère de hauteur h , déterminée à partir des équations 18, 19, 20 (chapitre IV, §.IV).

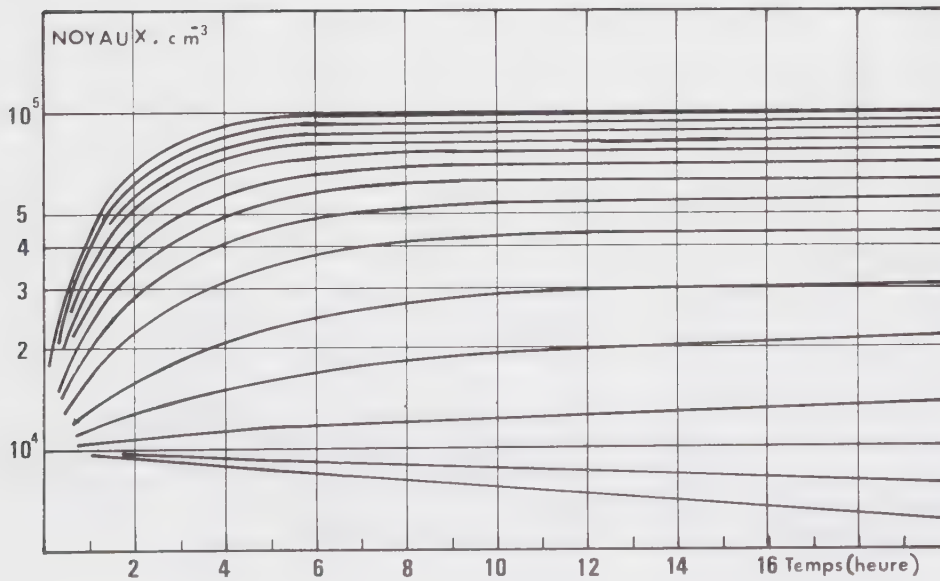
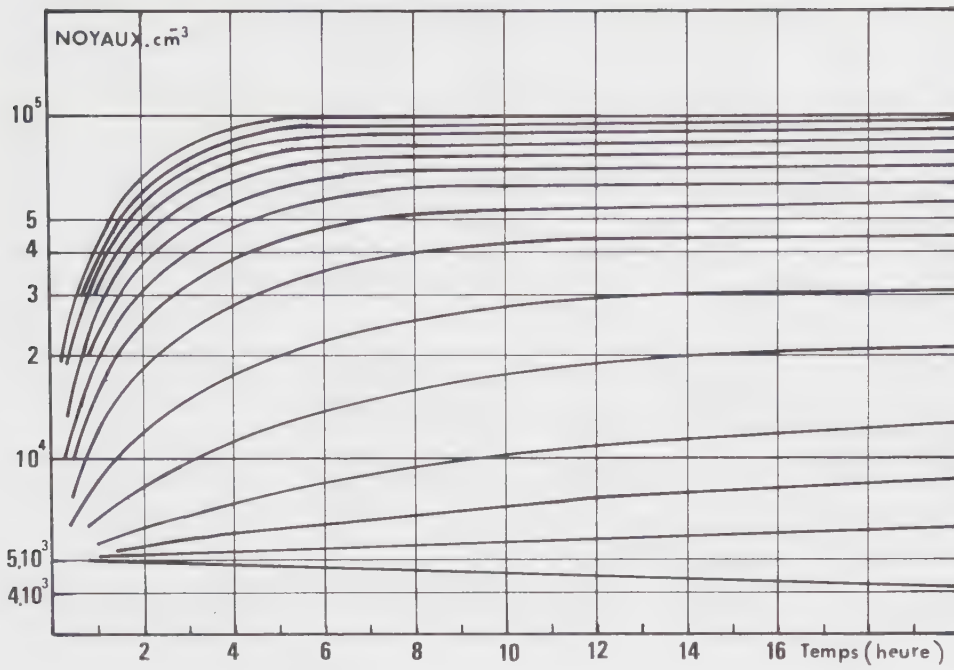
L'intensité de la source de radon est supposée être de $4.10^{-17} \text{Ci cm}^{-2} \text{s}^{-1}$.

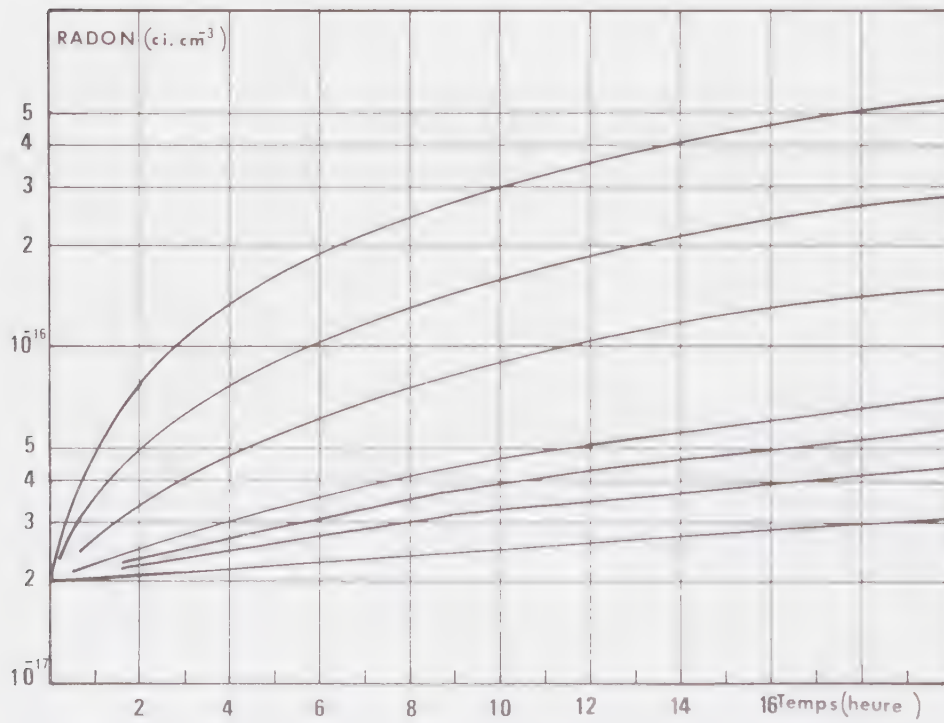
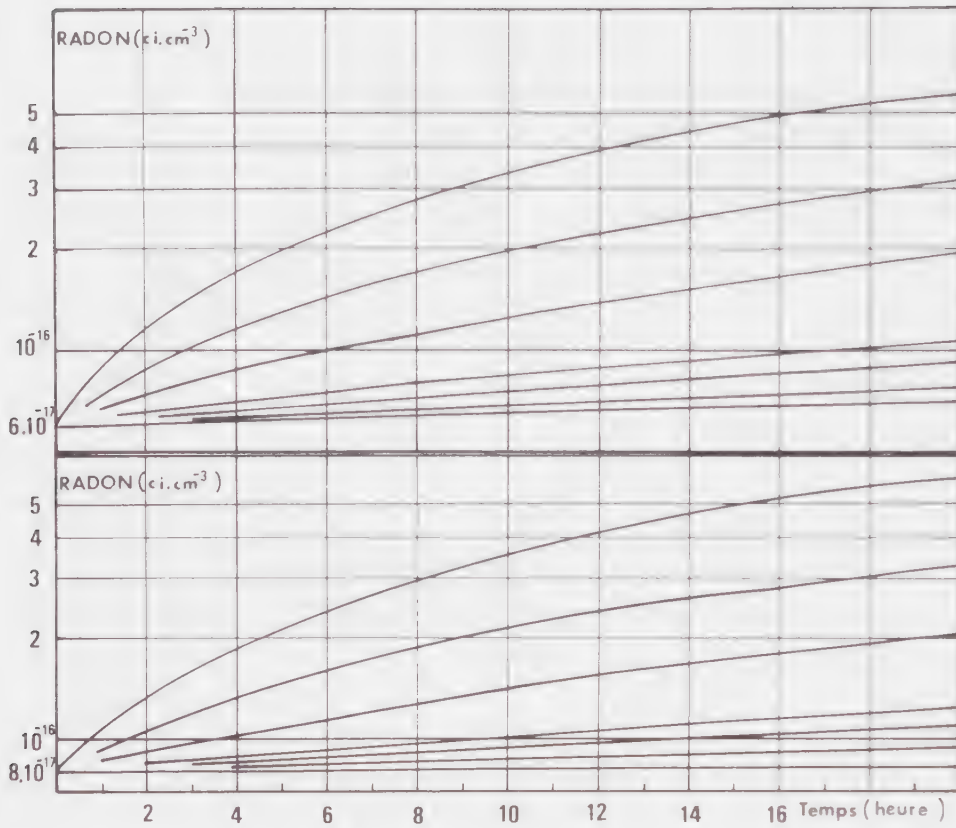
τ : représente le taux de formation de noyaux par seconde dans une colonne de la couche de mélange de 1 cm^2 de section ($\text{part. cm}^{-2} \text{s}^{-1}$).

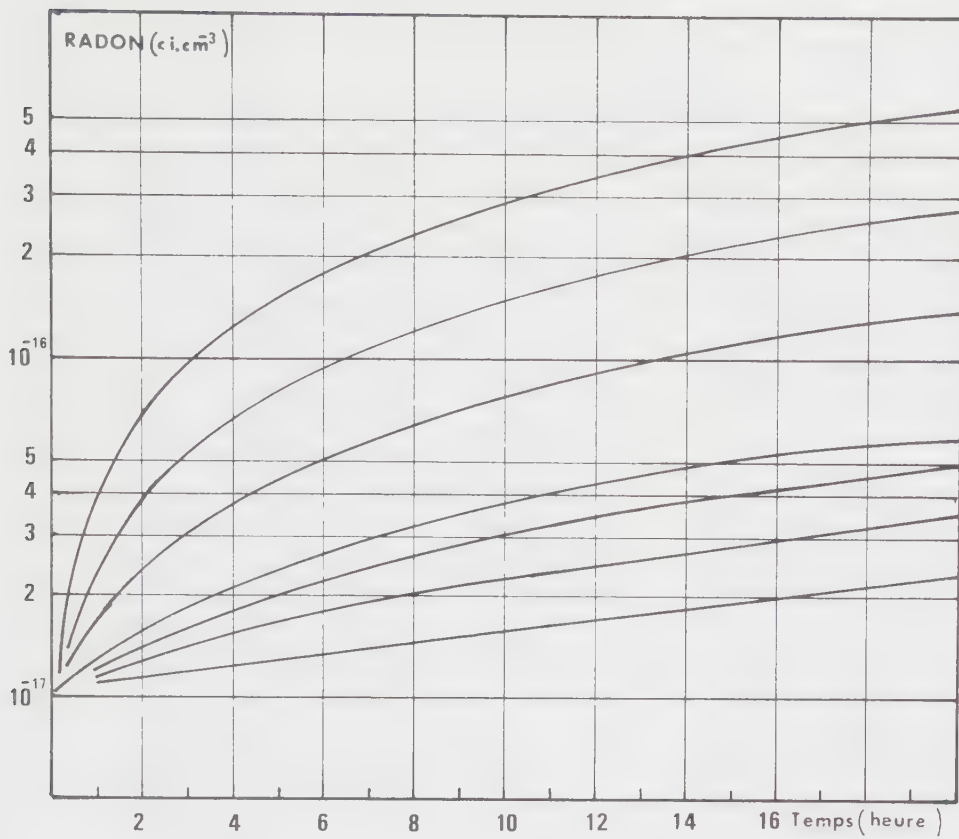
h : hauteur de la couche de mélange

τ/h : représente le taux de formation volumique de noyaux dans la colonne de hauteur h

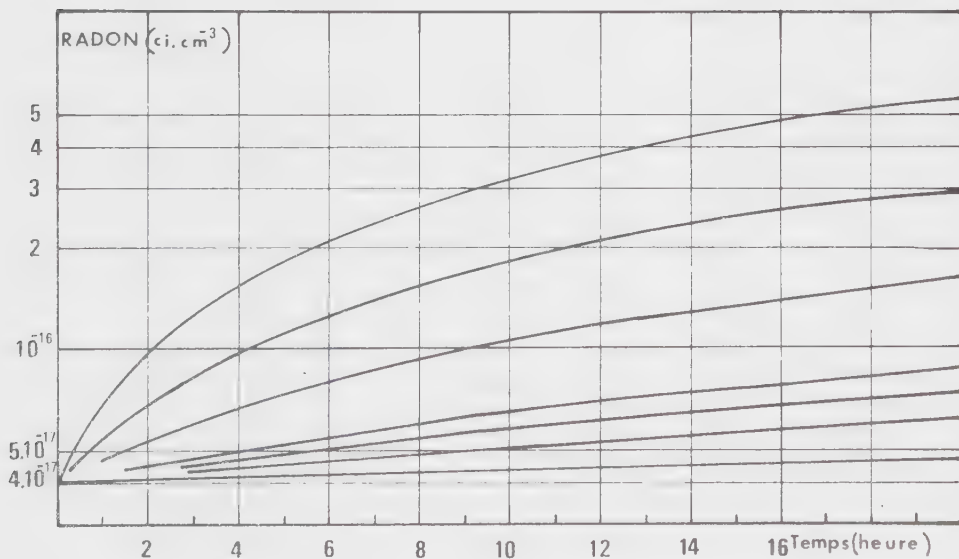








$h =$ 50 mètres
 ↓ 100 "
 ↓ 200 "
 ↓ 500 "
 ↓ 650 "
 ↓ 1000 "
 ↓ 2000 "
 Concentration volumique
 initiale dans la couche de
 hauteur h : $10^{-17} \text{ ci.cm}^{-3}$



$h =$ 50 mètres
 ↓ 100 "
 ↓ 200 "
 ↓ 500 "
 ↓ 650 "
 ↓ 1000 "
 ↓ 2000 "
 Concentration volumique
 initiale dans la couche de
 hauteur h : $4.10^{-17} \text{ ci.cm}^{-3}$

BIBLIOGRAPHIE

- ACKERMAN (P.) 1954
"Kondensationskernzählung in Payerne 1953"
Geofisica pura e applicata 29, p.168
- AITKEN (J.) 1911
"On some nuclei of cloudy condensation"
Proc. Roy. Soc. Edin., 31, p 495
- ALLET (C.), 1973
"Mesure de l'intensité des échanges verticaux dans la couche limite planétaire"
Thèse de 3e cycle n° 1354, Toulouse
- BLANCHARD (D.L.), 1963
"Progress in oceanography"
Pergamon Press, New York
- BRICARD (J.), 1965 a
"Problems of atmospheric and space electricity"
Elsevier Publishing Company Ed. S.C. Coroniti
- BRICARD (J.), GIROD (P.), PRADEL (J.) 1965 b
"Etat de charge des aérosols ultra-fins en milieu faiblement ionisé. Application aux gros ions atmosphériques"
J. Phys. Appl. 26, p. 141
- BRICARD (J.), CABANE (M.), MADELAINE (G.), VIGLA (D.), 1971
"Production d'aérosols en relation avec la photooxydation de l'anhydride sulfureux"
Aerosol Science, 2, 2, p. 275.
- BRICARD (J.), CABANE (M.), MADELAINE (G.), VIGLA (D.), 1972 a
"Formation and properties of neutral ultrafine particles and small ions conditioned by gaseous impurities of the air"
J. of Colloid and Interface Sci. 39, 1, p. 46
- BRICARD (J.), CAZES (P.), REISS (P.), TURPIN (P. Y.), 1972 b
"Contribution à l'étude de l'aérosol atmosphérique dans le domaine submicronique à l'aide de méthodes photo-électriques"
C.R. Acad. Sci., Paris, 175, B, p. 263
- CABROL (C.), 1970
"Réalisation d'un compteur de noyaux d'Aitken automatique et portable"
Thèse de 3e cycle n° 967, Toulouse
- CABROL (C.), LOPEZ (A.), CHAPUIS (A.) FONTAN (J.), 1972
"A self contained automatic and portable apparatus for the counting of particles"
Aerosol Science, 3, p. 281
- CADLE (R.D.), 1966
"Particle in the atmosphere and space"
Reinhold Publishing Corporation, New York
- CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), FONTAN (J.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.), 1970
"Spectre granulométrique des aérosols radioactifs dans une mine d'uranium"
Aerosol Science, 1, p. 243
- CHAPUIS (A.), 1971
"Caractéristiques radiologiques de l'atmosphère des mines d'uranium. Application à la radioprotection"
Thèse doctorat d'état n°461, Toulouse
- CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), FONTAN (J.), MADELAINE (G.), 1973
"Détermination de la fraction d'activité existant sous forme de RaA non attaché dans l'atmosphère d'une mine d'uranium"
Health Physics, 25, p. 59.
- COX (R.A.), PENKETT (S.A.)
"The photo-oxidation of sulfur dioxide in sunlight"
Atmospheric Environment, 4, p. 425

- CROZAT (G.), 1969
"Contribution à l'étude de la répartition verticale des éléments radioactifs à vie longue dans l'atmosphère"
Thèse 3e cycle n° 819 Toulouse
- DE MARCUS (W.C.), THOMAS (J.W.), 1952
"Theory of a diffusion battery"
O.R.N.L., 1413
- DERJAGUIN (B.), VLASSENKO (G.), 1948
"The coagulation of polydispersion systems"
Dokl. Akad. Nauk., SSR, 63, p. 155
- DEVIR (S.E.), 1963
"On the coagulation of aerosols (Part I)"
J. Colloid. Science 18, p. 744
- DEVIR (S.E.), 1966
"On the coagulation of aerosols, II : Size distribution changes in a coagulating aerosol"
J. Colloid. Science 21, p. 9
- DRUILHET (A.), GUEDALIA (D.), FONTAN (J.), LAURENT (J.L.), 1972
"Study of Rn-220 emanation deduced from measurements of vertical profiles in the atmosphere"
J. Geophys. Res., 77, p. 6506
- DRUILHET (A.), 1973
"Etude des transferts turbulents de matière dans l'atmosphère au voisinage du sol"
Thèse doctorat d'état n°527, Toulouse
- ENDOW (N.), DOYLE (G.J.), LOMER (G.E.), 1963
"The nature of some model photochemical aerosols"
A.P.C.A. Journal, 13, 4, p. 141
- FONTAN (J.), 1964
"Le dosage des radioéléments gazeux donnant des produits radioactifs de filiation. Son application à la mesure de la radioactivité naturelle"
Thèse doctorat ès-sciences n°218, Toulouse
- FRIEDLANDER (S.K.), 1960
"On the particle size spectrum of atmospheric aerosols"
J. Meteorol., 17, p. 373
- FRIEDLANDER (S.K.), 1961
"Solar radiant energy and its modification by the earth and its atmosphere"
Compendium of Meteorology, Am. Meteorol. Soc., p. 13
- FUCHS (N.A.), STECHKINA (I.B.), STAROSSELKI (V.I.), 1962
"Determination of distribution of aerosol particles according to size by diffusion method"
Brit. J. Appl. Phys., 13, p. 285
- FUCHS (N.A.), 1964
"The mechanics of aerosols"
Pergamon press
- GORMLEY (R.G.), KENNEDY (M.), 1949
"Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube"
Proceeding Royal Irish Acad., 52A, p. 161
- GUEDALIA (D.), LAURENT (J.L.), FONTAN (J.), DRUILHET (A.), 1970
"A study of Rn-220 emanation from soils"
J. Geophys. Res., 75, p. 357
- GUEDALIA (D.), LOPEZ (A.), FONTAN (J.), BIROT (A.), 1972
"Aircraft measurement of Rn-222, Aitken nuclei and small ions up to 6 kilometers"
J. Appl. Meteorol., 11, 4, p. 661
- GUEDALIA (D.), ALLET (C.), FONTAN (J.), DRUILHET (A.), ASSAF (G.), 1973
"Lead-212, radon and vertical mixing in the lower atmosphere (100-2000 m)"
Tellus, 25, 4, p. 381
- GUEDALIA (D.), ALLET (C.), FONTAN (J.), 1974
"Vertical exchange in the lower atmosphere. Using radon-222 and Pb-212"
Journal of Applied Meteorology, 13, (sous presses)

- HAYES (E.I.), SCOTT (J.A.), 1969
 "An automatic photoelectric condensation nucleus counter"
 Proc. Royal Irish Acad., 68 A, p.33
- HAYES (E.I.), 1970
 "The frequency distribution of atmospheric condensation nuclei concentration"
 Proc. Royal Irish Acad., 70A, p.59
- HIDY (G.M.), LILLY (D.K.), 1965
 "Solutions to the equations for the kinetics of coagulation"
 J. Colloid. Science, 20, p. 867
- HOGAN (A.W.), 1966
 "Some characteristics of Aitken nuclei concentrations"
 6e symposium international sur les noyaux de condensation
 J. Rech. Atmos. 2, 3, p.87
- HUERTAS (M.L.), 1972
 "Contribution à l'étude de la nature des ions positifs de la troposphère"
 Thèse doctorat ès-sciences n° 493,
 Toulouse
- HUSAR (R.B.), WHITBY (K.T.), LIU (B.Y.H.) 1972
 "Physical mechanisms governing the dynamics of Los Angeles smog aerosol"
 J. Colloid. and Inter. Sci., 39,1,p.211
- IMYANITOV (I.M.), CHUBARINA (E.V.), 1967
 "Electricity of the free atmosphere"
 Israël Program for Scientific Translation
- IRANI (R.R.), CALLIS (C.F.), 1963
 "Particle size : measurement, interpretation and application"
 Wiley, New York
- ISRAEL (H.), 1951
 "Radioactivity in atmosphere"
 Compendium of Meteorology;Am. Meteorol. Soc., p. 155
- ISRAEL (H.), 1957
 "Atmospheric electricity"
 Israël Program for Scientific Translation, vol. I
- JUNGE (C.E.), 1961
 "Vertical profiles of condensation nuclei in the stratosphere"
 J. Meteorol., 18, 4, p. 501
- JUNGE (C.E.), 1963
 "Air chemistry and radioactivity"
 International Geophysical series, vol.4,
 Academic Press, New York
- JUNGE (C.E.),JAENICKE (R.), 1971
 "New results in background aerosol studies from the Atlantic expedition of the R.V. Meteorol., Spring, 1969"
 Aerosol Science, 2, p. 305
- KANTER (H.), JUNGE (C.E.), 1969
 "A new automatic condensation nuclei counter for low particle concentrations"
 VIIe International Conference on Condensation and ice nuclei, Prague et Vienne
- KEEFE (D.), NOLAN (P.J.), RICH (T.A.), 1959
 "Charge equilibrium in aerosols according to the Boltzmann law"
 Proceeding of the Royal Irish Acad., 60 A, p. 27
- KRAAKEVICK (J.), 1958
 "The airborne measurement of atmospheric conductivity"
 J. Geophys. Res., 69, p. 161
- LANDSBERG (H.), 1938
 "Atmospheric condensation nuclei"
 Ergb. Kosmischen Phys., 3, p. 155
- LANGEVIN (P.), 1905
 "Une formule fondamentale de théorie cinétique"
 Ann. Chim. Phys., 5, p. 245

- LEVEQUE (M.), 1928
Ann. des mines, 13, p. 276
- LOPEZ (A.), 1969
"Mesure de la granulométrie des aérosols radioactifs dans une mine d'uranium"
Thèse 3e cycle, n° 796, Toulouse
- LOPEZ (A.), SERVANT (J.), FONTAN (J.), 1973
"Variation des concentrations et caractéristiques physiques des noyaux d'Aitken dans un site non pollué"
J. Atmos. Environ., 7, p. 945
- LOPEZ (A.), GUEDALIA (D.), SERVANT (J.), FONTAN (J.), 1974 a
"The advantage of the use of the radioactive tracers, radon-222 and lead-212 for the study of Aitken nuclei within the lower atmosphere"
J. Geophys. Res., 79, 9, p. 1243
- LOPEZ (A.), SERVANT (J.), FONTAN (J.), 1974 b
"Méthodes de mesure de l'intensité des sources de noyaux d'Aitken. Application à quelques-unes des principales sources naturelles et artificielles du Sud-Ouest de la France"
J. Atmos. Environ., sous presses
- MADELAINE (G.), ROURE (L.), 1966
"Contribution à l'étude de la précipitation électrostatique des aérosols"
Rapport C.E.A., R 3069
- MADELAINE (G.), 1968
"Formation et évolution des aérosols dans l'air filtré et dans l'air naturel. Action de la radioactivité"
Thèse doctorat d'état, Paris
- MEGAW (W.J.), WIFFEN (R.D.), 1961
"The nature of condensation nuclei"
Geofisica pura e applicata, 50, p. 118
- METNIEKS (A.L.), 1967
"On F. Verzar photo-electric automatic nucleus counters"
Geofisica pura e applicata, 36, p. 41
- MILLIKAN (R.A.), NEHER (H.V.), PICKERING (W.H.), 1942
Phys. Rev., 61, p. 397
- MONHEN (V.), 1966
"Untersuchungen über die anlagerung von neutralen und elektrisch geladenen emana-tion. Folgeprodukten an aerosole"
Thèse doctorat, Munich
- MULLER (H.), 1926
"Die theorie der koagulation polydisper-sed systeme"
Kolloid. Z., 38, p.1
- MULLER (W.), THAMS (J.C.), 1962
"Zum problem des sonnenaufgangseffektes der Kondensationskerne"
Geofisica pura e applicata, 52, p. 214
- MURPHY (T.), 1958
"The precision nucleus counter (type Pollak) with automatic recording"
Geofisica pura e applicata, 41, p. 194
- NOLAN (P.J.), DOHERTY (D.J.), 1950
"Size and charge distribution of at-mos-pheric condensation nuclei"
Proc. Royal Irish Acad., 53 A, p. 163
- NOLAN (P.J.), SCOTT (J.A.), 1964
"The influence of variations in pressure and temperature on the calibration of a photoelectric nucleus counter"
Proc. Roy. Irish Acad., Vol. 64, Sect. A p. 37
- PEARSON (J.E.), 1965
"Emanation of Rn-222 from soils and its use as a tracer"
J. Geophys. Res., 70, p. 5279
- POLLAK (L.W.), 1952
"A condensation nuclei counter with photo-graphic recording"
Geofisica pura e applicata, 22, p. 75
- POLLAK (L.W.), METNIEKS (A.L.), 1957
"On the determination of the diffusion coefficient of the heterogeneous aerosols by the dynamic method"
Geofisica pura e applicata, 37, p. 183

- POLLAK (L.W.), METNIEKS (A.L.), 1960
 "The influence of pressure and temperature on the counting of condensation nuclei"
 Geofisica pura e applicata, Part.I, vol. 47, p. 123 ; Part II, vol.50, p.1
- POLLAK (L.W.), 1963
 "A small portable photo-electric condensation nucleus counter"
 Geofisica pura e applicata, 55, p. 137
- RASMUSSEN (R.A.), WENT (F.W.), 1965
 "Volatile organic material of plant origin in the atmosphere"
 Proc. Nat. Acad. Sci. , 53, p. 215
- RASMUSSEN (R.A.), 1972
 "What do the hydrocarbons from traces contribute to air pollution"
 A.P.C.A. Journal, 22, 7, p. 537
- RENOUX (A.), 1965
 "Etude des ions radioactifs de l'atmosphère"
 Thèse doctorat d'état, Paris
- RENOUX (A.), TYMEN (G.), MADELAINE (G.), 1973 a
 "Détermination expérimentale des caractéristiques du cascade-impactor Casella MK2. Application à l'étude de la répartition granulométrique des aérosols et de la radioactivité de l'air"
 Atmos. Environ., 8, p. 41
- RENOUX (A.), TYMEN (G.), BUTOR (J.F.), MADELAINE (G.), 1973 b
 "Utilisation de cascades impactors pour l'étude de la répartition granulométrique des aérosols atmosphériques. Application à l'aérosol marin"
 Intern. Symposium on the Chemistry of Sea/Air particulate exchanges processes, Nice, France
- RENZETTI (N.A.), DOYLE (G.J.), 1960
 "Photochemical aerosol formation in sulfur dioxide-hydrocarbon systems"
 Int. J. Air Poll., 2, p. 327
- RICH (T.A.), 1955
 "A photo-electric nucleus counter with size discrimination"
 Geofisica pura e applicata, 31, p. 60
- ROLL (H.U.), 1965
 "Physics of the marine atmosphere"
 Academic Press, New York
- SAGALYN (R.C.), FAUCHER G.A.), 1954
 "Space and time of charged nuclei and electrical conductivity of the atmosphere"
 J. Atmos. and Terres. Phys., 5, 5, p. 253
- SCHAEFER (V.J.), 1970
 "Condensation nuclei. Production of very large number in country air"
 Science, 170, p. 851
- SCHLARB (G.), 1940
 "Untersuchungen über kondensationskerne und Leichtionen in künstlich klimatisierten Räumen"
 Bioklim. Beiblätter, Braunschweig 7, P.86
- SERVANT (J.), 1964
 "Le radon et ses dérivés à vie courte dans la basse atmosphère"
 Thèse doctorat d'état n° 2509, Paris
- SMOLUCHOWSKI (M.V.), 1917
 "Versuch einer mathematischen theorie der koagulationkinetic kolloider Lösungen"
 Z. Phys. Chem. 92, p. 129
- STERN (C.), 1968
 "Air pollution"
 Academic Press, New York
- STEVENSON (H.J.R.), SANDERSON (D.E.), ALTSHULLER (A.P.), 1965
 "Formation of photochemical aerosols"
 Int. J. Air Water Pollution, 9, p. 367
- SUTUGIN (A.G.), LUSHNIKOV (A.A.)
 CHERNYAEVA (G.A.), 1973
 "Bimodal size distribution in high dispersed aerosols"
 Aerosol Science, 4, p. 295

- TAN (C.W.), THOMAS (J.W.), 1972
 "Aerosol penetration through a parallel plate diffusion battery"
 Aerosol Science, 3, p. 39
- THOMAS (J.W.), 1966
 "Distribution of radioactivity on a polydisperse aerosol by the diffusion method"
 Health Physics, 12, p. 765
- TOWNSEND (J.), 1900
 "The diffusion of ions into gases"
 Phil. Trans., 193, p. 129
- TWOMEY (S.), 1962
 "Equations for the decay by diffusion of particles in an aerosol flowing through circular and rectangular channels"
 J. Recherche Atmos., 4, p. 173
- TWOMEY (S.), SEVERYNSSE (G.T.), 1963
 "Measurements of size distribution of natural aerosols"
 J. Atmos. Sci., 20, p. 392
- TWOMEY (S.), THORNDIKE (N.S.), 1971
 "On the production of particles in filtered atmospheric under intense illumination"
 J. Recherche Atmos. 5, p. 149
- TWOMEY (S.), 1973
 "Production of Aitken nuclei by ultraviolet light"
 J. Recherche Atmos., VII, 2, p. 115
- VERZAR (F.), 1953
 "Kondensations Kernzähler mit automatischer registrering"
 Arch. Met. Geophys. U. Bioklim., Vienne, A.V., p. 372
- VERZAR (F.), 1954
 "Kontinuierliche zählung von atmosphärischen Kondensations in St Moritz"
 Geofisica pura e applicata, 29, p. 28
- VOHRA (K.G.), VASUDEVAN (K.W.), NAIR (P.V.N.), 1970
 "Mechanism of nucleus forming reaction in the atmosphere"
 J. Geophys. Res., 75, 15, p. 2951
- WALTER (H.), 1973
 "Coagulation and size distribution of condensation aerosols"
 J. Aerosol Sci., 4, 1, p.1
- WEICKMANN (H.), 1955
 "Recent measurement of the vertical distribution of Aitken nuclei"
 Pergamon Press, New York
- WENT (F.W.), 1960
 "Organic matter in the atmosphere and its possible relation to petroleum formation"
 Proc. Nat. Acad. Sci., 46, 5, 1961
- WENT (F.W.), 1966
 "On the nature of Aitken condensation nuclei"
 Tellus, 18, 2, p. 549
- WHITBY (K.T.), HUSAR (R.B.), LIU (B.Y.H.) 1972
 "The aerosol size distribution of Los Angeles smog"
 J. Colloid and Interface Sci., 39,1, p. 177
- WILLIS (E.), KERKER (M.), MATIJEVIC (E.). 1967
 "Effect of brownian coagulation upon light scattering of colloidal dispersion of narrow size distribution"
 J. Colloid. and Interface Science, 23, p. 182.
- ZEBEL (G.), 1966
 "Coagulation aerosol"
 Aerosol Science, edited by C.N. Davies, Academic Press

AUTORISATION DE SOUTENANCE ACCORDÉE

TOULOUSE, le 9 mai 1974

Le Président de l'Université
Paul Sabatier

L. LARENG

